

令和3年度開始 廃炉・汚染水対策事業費補助金

燃料デブリの性状把握のための分析・推定技術の開発
(燃料デブリの経年変化特性の推定技術の開発)

2022年度最終報告

東芝エネルギーシステムズ株式会社

2023年7月

目次

1. 本研究の背景・目的	3ページ
2. 本研究の実施項目と目標	4ページ
3. 実施スケジュール	6ページ
4. 実施体制と連携する開発プロジェクト	7ページ
5. 実施内容	8ページ
(1) 燃料デブリの経年変化現象が生じる境界領域の確認及び 不確かさを低減するための試験方法立案と実施	
① 燃料デブリの化学組成、化学形及び相組成に起因する経年変化現象の境界領域の導出	
② 燃料デブリ周囲の環境条件に起因する経年変化の境界領域の導出	
③ 燃料デブリの経年変化の不確かさを低減させたデータの導出	
(2) 1F燃料デブリの化学的経年変化の推定	

1. 本研究の背景・目的

【背景】

東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所(1F)では、核燃料が炉内構造物とともに溶融し、燃料デブリとして原子炉圧力容器及び原子炉格納容器内に存在していると考えられる。この燃料デブリを取り出すにあたり、取り出し作業中及び取り出し後の保管中において、燃料デブリの性状や長期間の安定性を把握しておくことが重要である。

前事業(2019~2020年度)では、1F燃料デブリが長期間おかれる環境下で経年変化の発生有無、及び、その挙動を明らかにすることを目的に、経年変化の要因を設定し、模擬燃料デブリを用いて気中酸化試験及び水中溶出試験を行った。その結果、気中及び水中環境において、時間とともに微粒子化が生じる材質が確認された。具体的には、空気中において $Zr(O) + (U, Zr)O_2$ の燃料デブリに微粒子の発生が見られた。また、大気平衡水中において、 $(U, Zr)O_2$ 介在物を有するガラス状燃料デブリに微粒子の発生が見られた。それらの微粒子発生量は、試験温度や環境中の酸素分圧に依存した。そして、微粒子発生量の温度依存性データから活性化エネルギーを導出し、大気中あるいは空気平衡水中における微粒子発生量の基礎的段階の経年変化推定式を求め、微粒子発生量の試算を行った。

残された課題として、燃料デブリの経年変化が起きる原因やメカニズムの詳細をより明確にするには、情報や試験データが不十分な状況である。燃料デブリ微粒子化の長期予測性の向上や、微粒子の生じる燃料デブリの材料条件及び環境条件を明確にするために、試験データを追加取得し、微粒子化挙動をより明確にすることが重要である。

【目的】

本研究では、前事業で得られた知見も活用し、経年変化が出現する材料条件や環境条件の領域を導く試験データを取得して、発生条件範囲を定量化する。さらに長期予測性を向上させるための加速試験を行い、長期的な経年変化の推定を行う際に用いる試験データを取得して、気中及び水中における経年変化の程度を示す推定式を設定し、経年変化した燃料デブリが燃料デブリの取り出しや収納・移送・保管方法に及ぼす影響を検討する。

2. 本研究の実施項目と目標（1）

(1) 燃料デブリの経年変化現象が生じる境界領域の確認及び不確かさを低減するための試験方法立案と実施

実施項目	目標
①燃料デブリの化学組成、化学形及び相組成に起因する経年変化現象の境界領域の導出	1F燃料デブリの経年変化を引き起こすと考えられる要因に基づいて化学組成等の材料条件を変化させた模擬燃料デブリを作製し、かつ、経年変化を模擬的に評価する気中酸化試験および水中溶出試験方法を立案するとともに、評価試験を実施し、経年変化が出現する材料条件の領域を導く試験データを取得する。 (終了時目標TRL：レベル2)
②燃料デブリ周囲の環境条件に起因する経年変化の境界領域の導出	1F燃料デブリの経年変化要因に基づいて模擬燃料デブリを作製し、燃料デブリ周囲の環境条件を変化させた気中酸化試験および水中溶出試験方法を立案するとともに、評価試験を実施し、経年変化が出現する環境条件の領域を導く試験データを取得する。 (終了時目標TRL：レベル2)
③燃料デブリの経年変化の不確かさを低減させたデータの導出	上記①および②において、経年変化が出現する燃料デブリの気中酸化試験および水中溶出試験について、データのばらつきを低減するための試験時間を長くした試験を行い、長期的な経年変化の推定を行う際に用いる試験データを取得する。 (終了時目標TRL：レベル2)

2. 本研究の実施項目と目標（2）

(2) 1F燃料デブリの化学的経年変化の推定

実施項目	目標
燃料デブリの経年変化予測	<p>燃料デブリが経年変化を発現する材料条件および環境条件範囲を明確にする。 （終了時目標 T R L : レベル2）</p> <p>経年変化が生じる材料条件と環境条件の組合せにおいて、気中および水中における経年変化の程度を、時間の関数で推定式を設定する。 （終了時目標 T R L : レベル2）</p> <p>燃料デブリの経年変化を「2号機」と「1号機及び3号機」で個別に推定する。 （終了時目標 T R L : レベル2）</p> <p>各廃炉工程における燃料デブリの経年変化を推定し、関連事業の開発に資する報告を行う。 （終了時目標 T R L : レベル2）</p>

4. 実施体制と連携する開発プロジェクト

東芝エネルギーシステムズ株式会社

(1) 燃料デブリの経年変化の主たる要因として酸化・溶出に着目し、現象が生じる境界領域を見出すとともに、不確かさを低減するための試験方法立案及び実施

- ・試験計画
- ・試験要領策定

(2) 1F燃料デブリにおける経年変化の推定

- ・経年変化予測及び影響検討

東京電力ホールディングス株式会社

- 現場適用性の観点での助言及び諸調整

日本核燃料開発株式会社

(1) 燃料デブリの経年変化の主たる要因として酸化・溶出に着目し、現象が生じる境界領域を見出すとともに、不確かさを低減するための試験方法立案及び実施

- ・試験計画
- ・試験要領策定
- ・模擬デブリ作製
- ・特性試験装置製作
- ・燃料デブリの経年変化特性試験

(2) 燃料デブリの化学的経年変化予測

- ・経年変化の発生条件の整理
- ・経年変化予測式の策定及び
微粒子発生量の算出

(連携する開発プロジェクト)

燃料デブリの
取り出し工法の開発

燃料デブリの性状把握のための
分析・推定技術の開発

燃料デブリ収納・
移送・保管技術の開発

安全システムの開発

総合的な炉内状況把握の高度化

5. 実施内容

(1) 燃料デブリの経年変化現象が生じる境界領域の確認及び不確かさを低減するための試験方法立案と実施

▶ 研究の背景（1）

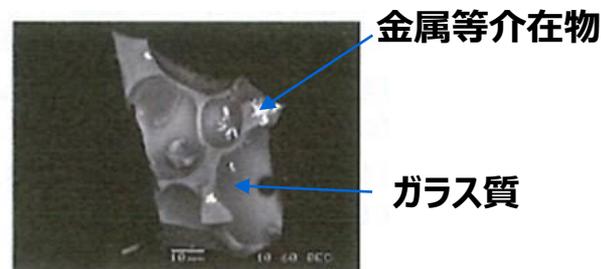
● チョルノービリ原発燃料デブリ(FCM)の経年変化現象（自己崩壊と微粒子化）

事故から30年以上経過したチョルノービリ原子力発電所では、FCM近傍で、ミクロンオーダーの微粒子が検出されている。

FCMは大気環境のもと、昼夜や季節の温度差にさらされる環境に置かれており、ブロック状に崩壊を発生しているものもある。また、一部のFCMは水に触れた状態であり、形の変化が見られている。

またロシアのクローピン・ラジウム研究所では、事故直後に収集したFCMサンプルの部分的な自己崩壊が一部の燃料デブリに認められている。

FCM : Fuel Containing Material



微粒子の電子顕微鏡写真

● スリーマイルアイランド原発2号機（TMI-2）の燃料デブリ

一方、JAEA東海に大気環境で保管されるTMI-2燃料デブリサンプルは40年以上経過した現在でも変化がみられていない。

TMI-2では、燃料デブリの安定性の高さから、固化、固定化等の処理をせずにキャニスタ内に収納、乾燥後、乾式保管が行われている。



TMI-2燃料デブリの外観

出典：中野 他 燃料デブリ取り出しに向けての取組み 日本原子力学会2017秋
http://www.aesj.or.jp/~wchem/2017_aki_kikaku_1.pdf

5. 実施内容

(1) 燃料デブリの経年変化現象が生じる境界領域の確認及び不確かさを低減するための試験方法立案と実施

▶ 本研究の背景 (2)

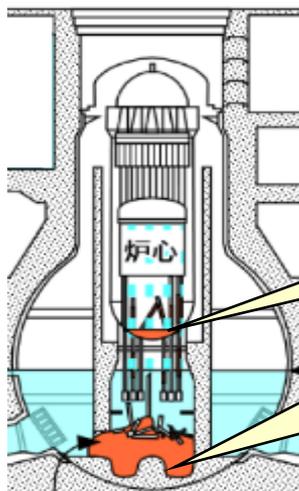
● 福島第一原子力発電所(1F)の燃料デブリ

- U、Zr、Feを主成分とする燃料デブリがRPV内に存在すると推定されている。
- MCCIによるSi比率の高いガラス状燃料デブリが、ペDESTAL下部に存在すると推定されている。



廃炉工程で想定される環境等を踏まえ、1F燃料デブリの経年変化の推定が必要である。

RPV : Reactor Pressure Vessel
MCCI : Molten Core Concrete Interaction
PCV : Primary Containment Vessel



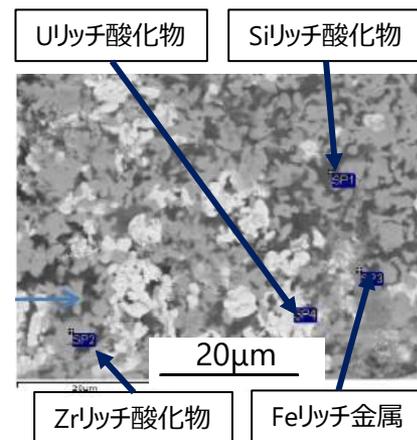
RPV内の燃料デブリ
・ UO_2 、Zr、鋼材等から生成され、
U、Zr、Feが主成分である点が、TMI-2燃料デブリに近いと推定される。

ペDESTAL下部の燃料デブリ
・溶融燃料や金属、コンクリートがMCCIを起こし、ガラス状燃料デブリが生成していると推定される。

RPV・PCVの状態と燃料デブリ分布推定図^[1]



空洞
低密度酸化層
高密度酸化層
金属が多い層
・金属光沢、磁石が付着



1F模擬大型MCCI試験サンプルの断面写真及びマイクロ組織^[2,3]

[1] NDF 東京電力HD(株)福島第一原子力発電所の廃炉のための技術戦略プラン2020 2020年10月6日

[2] IRID「廃炉・汚染水対策事業費補助金(燃料デブリの性状把握・分析技術の開発)」中間報告(2017年5月) http://irid.or.jp/wp-content/uploads/2017/06/20160000_07.pdf

[3] 鷲谷忠博, JAEA/IRID, 第2回福島第一廃炉国際フォーラム資料, (2017) https://ndf-forum.com/2nd/ref/ws1-washiya_jp.pdf

5. 実施内容

(1) 燃料デブリの経年変化現象が生じる境界領域の確認及び不確かさを低減するための試験方法立案と実施

▶ 前事業の主な成果^[1] (TENEX* : 2018~2020年度)

* 2018~2020年度に前事業を実施したロシア企業

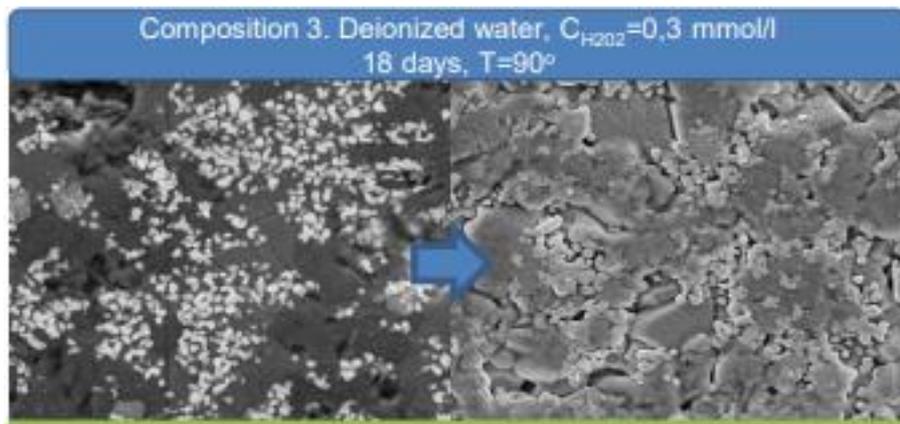
- ✓ ガラス状模擬燃料デブリにおけるCm及びPuの影響を確認
→ 物理的影響も認められるものの化学的影響が大きいことが判明

➤ 1F炉内元素比や事故進展に沿った温度履歴のガラス状模擬燃料デブリを中心に作製

- (U,Zr)O₂等の析出物がガラスマトリックス内に形成
- 投入元素比に応じて形状が変化

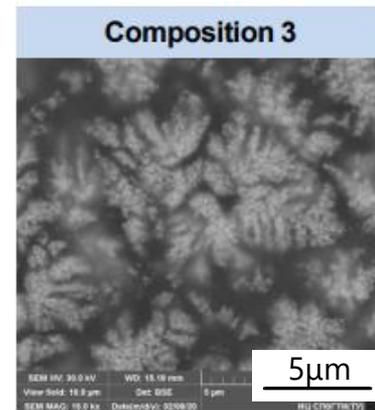
➤ 水中加速試験により、溶出挙動を中心に調査

- ガラスマトリックス溶出とともに表層が変化

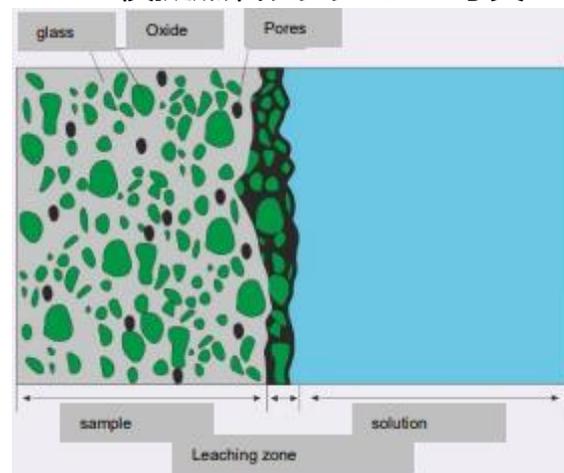


➤ 表層の残留層が微粒子化リスクを持つと推定

- 残留層 : Fe,Zr,U等の濃縮した層



模擬燃料デブリのSEM写真



経年変化挙動の模式図

[1] 廃炉・汚染水・処理水対策事業, 【TENEX】平成30年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業」に関する補助事業(第二次公募、燃料デブリの性状把握のための分析・推定技術の開発(燃料デブリの経年変化特性の推定技術の開発))の成果の概要【2021年10月26日掲載】, <https://dccc-program.jp/4031>

5. 実施内容

(1) 燃料デブリの経年変化現象が生じる境界領域の確認及び不確かさを低減するための試験方法立案と実施

▶ 前事業の主な成果^[1] (東芝ESS : 2019～2020年度)

確認すべき現象の明確化

- ・ 今後の廃炉作業における経年変化リスク ⇒ 微粒子の飛散リスク
- ・ 今後、燃料デブリの置かれる環境の変化 ⇒ PCV内での窒素封入から空気環境へ変化



微粒子を発生させる燃料デブリの変化要因(酸化要因)を想定

(当初想定した要因：ミクロな局所的体積変化 ⇒ 亀裂発生・成長 ⇒ 微粒子発生)

- (U,Zr)O₂のミクロ相を含む燃料デブリ → U₃O₈等による局所的体積増大 (微粒子発生。U₃O₈は検知されない。)
- FeやFeOのミクロ相を含む燃料デブリ → Fe₂O₃による局所的体積増大 (微粒子発生。一部Fe₂O₃も確認。)
- Zr(O)のミクロ相を含む燃料デブリ → ZrO₂による局所的体積増大 (微粒子発生。ZrO₂は検出未滿。)
- NaやB等を含むガラス状燃料デブリ → 成分溶出による局所体積変化 (微粒子発生には至らなかった。)

変化要因を有する1F模擬燃料デブリを作製し、微粒子発生有無を調査

試料名	模擬燃料デブリの材質
種類1	(U,Zr)O ₂ + (Zr,U)O ₂
種類2	Zr(O) + (U,Zr)O ₂
種類3	UO ₂ 析出ガラス状燃料デブリ
種類4	Zr-U-O析出ガラス状燃料デブリ

種類5	Fe析出ガラス状燃料デブリ
種類6	FeO析出ガラス状燃料デブリ
種類7	析出物の無いガラス状燃料デブリ
種類8	B含有ガラス状燃料デブリ
種類9	(U,Zr)O ₂ 介在ガラス状燃料デブリ

- ✓ 変化要因を有する模擬燃料デブリを作製可能な、原料組成と作製手順を設定。
- ✓ 1F環境で生成したと想定される燃料デブリと矛盾が無い雰囲気中でサンプルを作製。

[1] 廃炉・汚染水・処理水対策事業、【東芝ESS】平成30年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業」に関する補助事業（第二次公募、燃料デブリの性状把握のための分析・推定技術の開発（燃料デブリの経年変化特性の推定技術の開発））の成果の概要【2021年11月18日掲載】、<https://dccc-program.jp/4076>

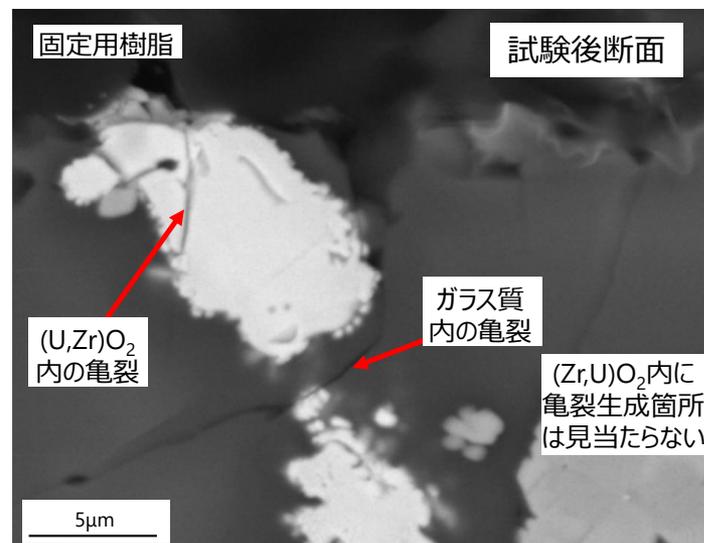
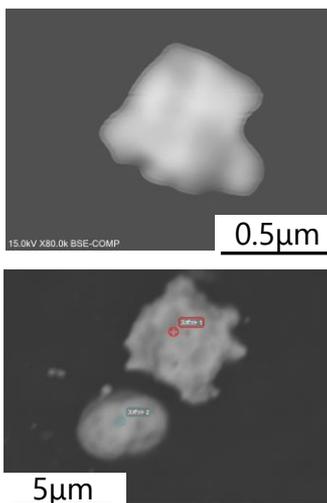
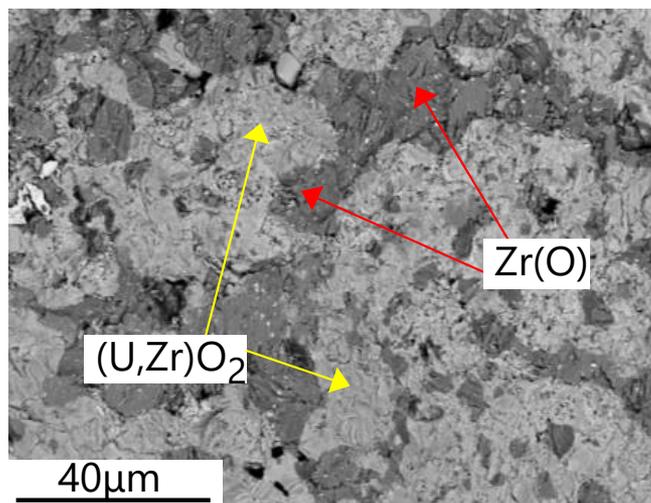
5. 実施内容

(1) 燃料デブリの経年変化現象が生じる境界領域の確認及び不確かさを低減するための試験方法立案と実施

▶ 前事業の主な成果^[1] (東芝ESS : 2019~2020年度)

試験の結果、微粒子発生を伴う変化を発生するケースが存在することが判明

- Zr(O)ミクロ相を含む非ガラス状燃料デブリ : $Zr(O)+(U,Zr)O_2$**
⇒ 空气中試験で、Uを含む微粒子が発生
- (U,Zr)O₂析出物を含むガラス状燃料デブリ : (U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリ**
⇒ 空気平衡水中試験で、Uを含む微粒子が発生
- Fe,FeO析出物を含むガラス状燃料デブリ : Fe,FeO介在ガラス状燃料デブリ**
⇒ 空气中及び空気平衡水中試験で、Feを主成分とする微粒子が発生



Zr(O)+(U,Zr)O₂のミクロ相(左)と発生した微粒子(右)

(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリ表層の亀裂

[1] 廃炉・汚染水・処理水対策事業、【東芝ESS】平成30年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業」に関する補助事業（第二次公募、燃料デブリの性状把握のための分析・推定技術の開発（燃料デブリの経年変化特性の推定技術の開発））の成果の概要【2021年11月18日掲載】、<https://dccc-program.jp/4076>

5. 実施内容

(1) 燃料デブリの経年変化現象が生じる境界領域の確認及び不確かさを低減するための試験方法立案と実施

▶ 目標

前事業（2019～2020年度）

前事業で達成した開発レベル(TRL=1)

1F燃料デブリでの化学的経年変化による微粒子発生の有無を調査



発生するケース有り

微粒子発生 of 基礎的性質を整理し、1F廃炉工程への影響が考えられることを確認

- ・今後の廃炉工程における環境中酸素分圧の上昇により、一部の燃料デブリにおいて発生。
- ・発生する微粒子は、数ミクロン以下のU含有浮遊性微粒子が含まれる。
- ・確認できた期間では長期にわたり微粒子発生が継続。

→ 各PJに定性的情報を提供



本事業（2021～2022年度）

本事業で目標とする開発レベル(TRL=2)

1F廃炉の各工程における微粒子発生量を定量的に予測し、各工程の工学課題を整理

- ・微粒子化現象を詳細に調べ、定量化・定式化を行う。
- ・廃炉工程における課題を整理するため、具体的条件範囲における微粒子発生量を予測

→ 各PJに定量的情報を提供

このために、微粒子化する燃料デブリの材料条件、環境条件を定量的に見出し、長期予測性を向上させる技術開発を行う。

5. 実施内容

(1) 燃料デブリの経年変化現象が生じる境界領域の確認及び不確かさを低減するための試験方法立案と実施

▶ 目的

微粒子化する燃料デブリの材料条件、環境条件を定量的に見出し、長期予測性を向上させる技術開発を行う。

⇒各廃炉工程における1F燃料デブリの経年変化を推定

燃料デブリの経年変化特性の推定技術の開発(本事業)

(1) 微粒子化現象が生じる境界領域を見出し、長期予測性を向上させるための試験方法の立案と実施

- ① 燃料デブリの材料条件の検討
- ② 微粒子化を発生する環境条件の検討
- ③ 長期予測性を向上させるための加速試験の実施

↓ 模擬デブリによる試験データ

(2) 1F燃料デブリにおける経年変化の推定

号機毎、工程毎の
経年変化の定量的推定

燃料デブリ取り出し、移送・保管工程や臨界管理等の設計に資する情報を提供

5. 実施内容

(1)①燃料デブリの組成や相状態の範囲の検討の概要

前事業で示された微粒子化の性質(組成や相状態に関するもの)

- Zr(O)₂+(U,Zr)O₂の気中試験
 - 試料のU/Zr比やミクロ組織に応じて、微粒子発生量が変化
- (U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの水中試験
 - (U,Zr)O₂介在物とガラス質の比率によって微粒子発生量がわずかに変化
- FeO介在ガラス状燃料デブリの気中及び水中試験
 - 酸素存在下で、Feを主成分とするサビ(Uを含有しない)が発生 ⇒ 注目しない
 - (U,Zr)O₂析出物と同時に存在すると微粒子発生が重畳される傾向が見られた。
- TENEX事業におけるU-Zr-Fe-O(非ガラス質)の気中試験
 - FeOを含んだUO₂-ZrO₂において粒子が発生



本事業(1)①燃料デブリや相状態の範囲の検討：2年間の実施項目

- Zr(O)₂+(U,Zr)O₂のU/Zr比を系統的に変化させ、気中微粒子化範囲を検討
- (U,Zr)O₂介在物とガラス質の比率を変化させ、水中微粒子化範囲を検討
- FeO+(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの水中微粒子化を検討
- FeO+(U,Zr)O₂を含んだ非ガラス状模擬燃料デブリの気中微粒子化を検討
- ⇒ ■ FeO+(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの気中微粒子化も検討に加える

- 上記をパラメータとして、酸素分圧が高いなど影響の大きい環境下での気中試験、水中試験を実施して微粒子化する燃料デブリ範囲を検討するとともに、微粒子発生量、微粒子の粒径及び組成を測定する。

5. 実施内容

(1)②微粒子化を発生する環境条件範囲の検討の概要

前事業で示された微粒子化の性質(環境条件に関するもの)

■ Zr(O)₂+(U,Zr)O₂の気中試験

➤ 酸素存在下で、Zr(O)₂と(U,Zr)O₂の微粒子が発生

■ (U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの水中試験

➤ 大気平衡水中で、Uを含むガラス質と(U,Zr)O₂の微粒子が発生

➤ わずかな水流によって微粒子発生量が変化

➤ 金属Fe析出物を多く含む場合、ガラス質の微粒子も発生



本事業(1)②微粒子化を発生する環境条件範囲の検討：2年間の実施項目

✓ Zr(O)₂+(U,Zr)O₂を対象、また必要に応じFeO含有ガラス状及び非ガラス状燃料デブリについても検討 ■■■

➤ 微粒子化を発生する雰囲気中酸素分圧範囲

➤ 湿潤/乾燥空気の比較

✓ (U,Zr)O₂介在、または必要に応じ(U,Zr)O₂+FeO介在ガラス状燃料デブリを対象 ■■

➤ 微粒子化を発生する水中の平衡酸素分圧範囲

➤ ホウ酸等によりpHや酸化種を変化させた試験

➤ わずかな水流を変化させた試験

➤ 水中試験後の乾燥試験

- 上記をパラメータとして試験を実施して、発生する微粒子量、微粒子の粒径及び組成を測定する。

5. 実施内容

(1)③長期予測性を向上させるための加速試験実施の概要

前事業で示された加速試験倍率と模擬期間

 Zr(O)₂+(U,Zr)O₂の気中試験

- 130℃での温度加速試験による加速倍率約120倍、14年間相当試験を実施

 (U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの水中試験

- 90℃での温度加速試験による加速倍率約30倍、0.3年間相当試験を実施



本事業(1)③長期予測性を向上させるための加速試験の実施：2年間の実施項目

- 加速試験方法の検討

温度及び酸素分圧上昇による加速効果の検討

- 長期加速試験の実施

  ・対象：Zr(O)₂+(U,Zr)O₂、及び(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリ

- 微粒子化メカニズムを踏まえた加速倍率の設定

- 数十年相当の加速試験(長時間試験)の実施

- 必要に応じ、FeO+(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリやFeO+(U,Zr)O₂を含んだ非ガラス状模擬燃料デブリについても長期挙動の検討を行う。   

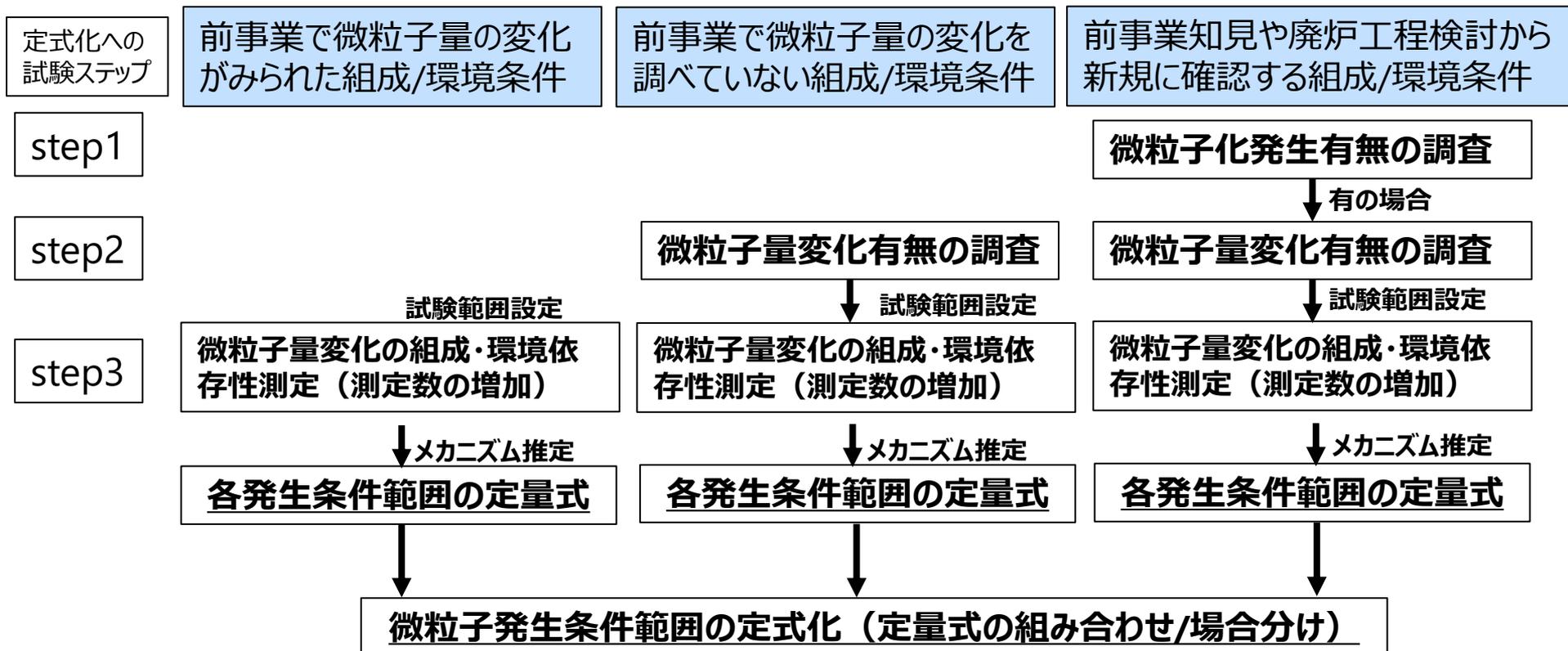
5. 実施内容

(1) 燃料デブリの経年変化現象が生じる境界領域の確認及び不確かさを低減するための試験方法立案と実施

▶ 前事業で取得したデータを活用した①及び②の試験手順

- ① 燃料デブリの組成や相状態の範囲の検討
- ② 微粒子化を発生する環境条件範囲の検討

- ✓ 廃炉工程を考え、必要とされる組成/環境条件を定量的に測定
- ✓ 前事業で取得した知見やデータを積極的に活用



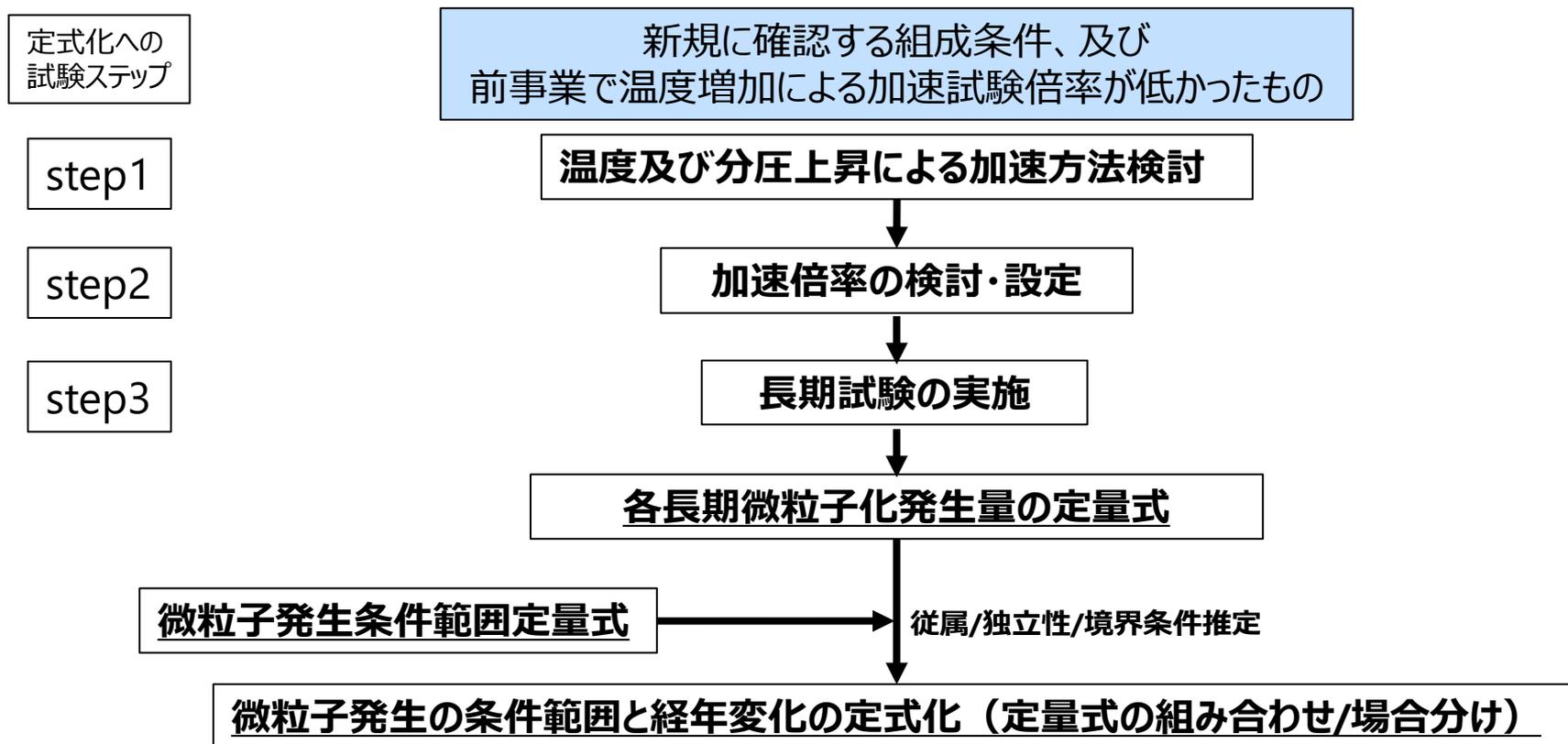
5. 実施内容

(1) 燃料デブリの経年変化現象が生じる境界領域の確認及び不確かさを低減するための試験方法立案と実施

▶ 前事業で取得したデータを活用した③の試験手順

③ 長期予測性を向上させるための加速試験の実施

- ✓ 廃炉工程を考え、必要とされる期間にわたる長期微粒子化発生量を予測
- ✓ 前事業で取得した知見やデータを積極的に活用

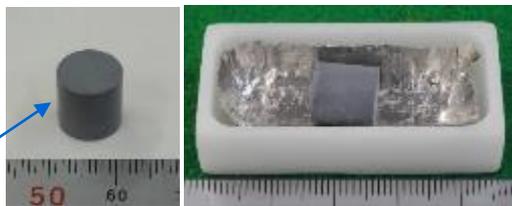


5. 実施内容

(1) 燃料デブリの経年変化現象が生じる境界領域の確認及び不確かさを低減するための試験方法立案と実施

▶ 模擬燃料デブリ作製に使用する加熱炉

例)
SiO₂粉末・
U・Zr・Fe酸化物
粉末の混合成形体



ケラマックス炉
加熱温度 ~1700℃
H₂/H₂O雰囲気制御可能

又は



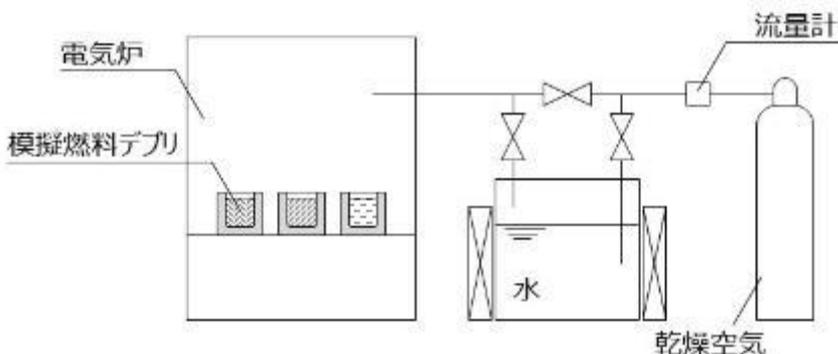
高周波加熱炉
加熱温度 ~2500℃

高周波加熱炉： 溶融に高温が必要な酸化物燃料デブリのサンプル作製に主に使用
ケラマックス炉： 事故炉内H₂/H₂O雰囲気に影響される成分を持つガラスマトリックスを有する
ガラス状燃料デブリのサンプル作製に主に使用

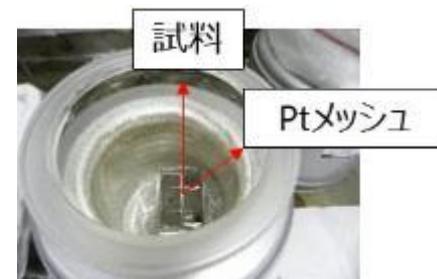
5. 実施内容

(1) 燃料デブリの経年変化現象が生じる境界領域の確認及び不確かさを低減するための試験方法立案と実施

▶ 気中試験（雰囲気曝露加速試験）体系



気中試験装置の模式図



気中試験装置外観

微粒子量の計測手順

- (1) Ptメッシュ下にあるステンレス上に落ちた微粒子を導電テープで全量回収
- (2) 導電テープ上の微粒子をSEM-BSEで観察
- (3) 2値化ソフトにより、微粒子個数と、各微粒子の大きさ(ピクセル数)を計測

計測限界約0.5 μm （半径0.5 μm 未満には数え落しがあるが、全体に占める体積割合はいずれも非常に小さかった。）

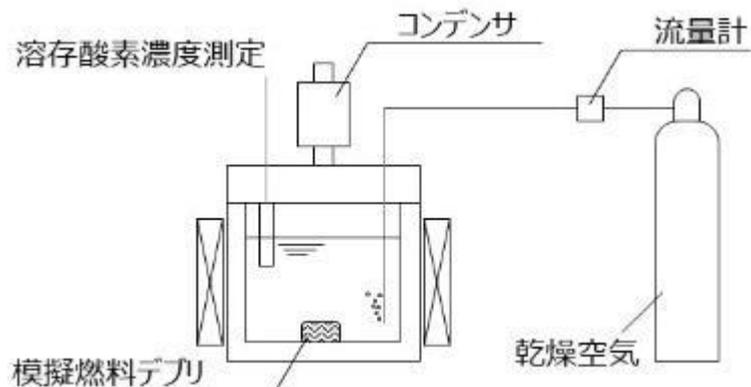
- (4) 各微粒子を球形として、ピクセル数から半径を算出、また半径から体積を算出
- (5) 密度を10g/cm³と仮定して、各微粒子の重量を算出

SEM : Scanning Electron Microscope
BSE : Back Scattered Electrons (Image)

5. 実施内容

(1) 燃料デブリの経年変化現象が生じる境界領域の確認及び不確かさを低減するための試験方法立案と実施

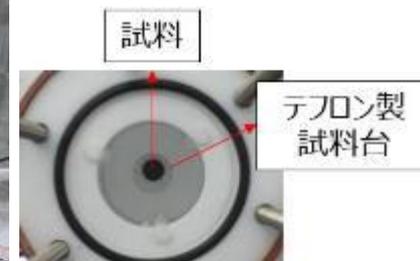
▶ 水中試験（水中浸漬加速試験）体系



水中試験装置の模式図



水中試験装置外観



・水中試験体系

微粒子量の計測手順

- (1) 試験後の溶液をろ過したろ紙の重量変化を、微粒子量とした。
なお、微粒子の粒径分布については、微粒子の一部を標本として以下のように求めた。
- (2) ろ紙上の微粒子の一部を、導電テープで回収
- (3) 導電テープ上の微粒子をSEM-BSEで観察
- (4) 2値化ソフトにより、微粒子個数と、各微粒子の大きさ(ピクセル数)を計測
計測限界約 $0.5\mu\text{m}$ (半径 $0.5\mu\text{m}$ 未満には数え落しがあるが、全体に占める体積割合はいずれも非常に小さかった。)
- (5) 各微粒子を球形として、ピクセル数から半径を算出
- (6) 回収した一部微粒子を標本として、粒径毎の存在割合を計算
- (7) 粒径毎の微粒子個数を、(1)の微粒子量から算出

5. 実施内容

(1) 燃料デブリの経年変化現象が生じる境界領域の確認及び不確かさを低減するための試験方法立案と実施

2021年度に実施した試験の一覧

微粒子の発生有無や環境条件による変化有無(STEP1,2)を中心に試験を実施

気中/水中	試験No.	種類	試験条件のねらい		その他試験条件
■ 模擬燃料デブリ (種類2) : $Zr(O) + (U,Zr)O_2$ (種類23,24は $Zr(O)/(U,Zr)O_2$ 比を変えたもの)					
気中試験	O-21	23	①組成範囲 : $Zr(O)/(U,Zr)O_2$ 比	組成を2点追加	110°C/100h 湿潤空気
	O-22	24			
	O-27	2	②環境条件範囲 : 湿度	乾燥空気中での変化有無⇒ 変化あり	110°C/100h
	O-29	2	③長期挙動 : 加速因子の検討	100% O_2 中での加速検討⇒採用せず	110°C/100h
■ 模擬燃料デブリ (種類10*) : $FeO + (U,Zr)O_2$ *前事業 (p11) に続く模擬燃料デブリの試料名					
気中試験	O-23	10	①組成範囲 : $FeO/(U,Zr)O_2$	微粒子化の有無⇒ 微粒子発生あり	110°C/100h
	O-24	10	②環境条件範囲 : 酸素分圧	N_2 中での変化有無⇒ 変化あり	110°C/100h
■ 模擬燃料デブリ (種類93) : $FeO + (U,Zr)O_2$ 介在ガラス状燃料デブリ					
気中試験	O-25	93	①組成範囲 : $FeO/(U,Zr)O_2$ ガラス	湿潤空気中や N_2 中での変化有無 ⇒ 微粒子発生あり、変化あり	110°C/100h
	O-26		②環境条件範囲 : 酸素分圧		
	O-28	93	②環境条件範囲 : 湿度	乾燥空気中での変化を確認⇒ 変化あり	110°C/100h
■ 模擬燃料デブリ (種類91) : $(U,Zr)O_2$ 介在ガラス状燃料デブリ (種類911,912は $(U,Zr)O_2/SiO_2$ 比を変えたもの)					
水中試験	L-21	911	①組成範囲 : $(U,Zr)O_2/SiO_2$ 比	組成を2点追加 (L-22は UO_2 介在ガラス状燃料デブリで実施)	90°C/100h 空気平衡水
	L-22	912			
	L-23	91	②環境条件範囲 : 平衡酸素分圧	水中平衡酸素分圧を1点追加	90°C/100h
	L-26	91	②環境条件範囲 : 陰イオン種	ホウ酸水での微粒子化有無	90°C/100h
	L-28	91	③長期挙動 : 加速因子の検討	100% O_2 中での加速検討⇒採用せず	90°C/100h
■ 模擬燃料デブリ (種類93) : $FeO + (U,Zr)O_2$ 介在ガラス状燃料デブリ					
水中試験	L-24	93	②環境条件範囲 : 平衡酸素分圧	N_2 や $N_2 + 2\%O_2$ 平衡水中での変化有無 ⇒ 変化あり	90°C/100h
	L-25				
	L-27	93	②環境条件範囲 : 浸漬後乾燥	微粒子化の有無	90°C/100h
	L-29	93	③長期挙動 : 加速因子の検討	100% O_2 中での加速検討⇒採用せず	90°C/100h

5. 実施内容

(1) 燃料デブリの経年変化現象が生じる境界領域の確認及び不確かさを低減するための試験方法立案と実施

▶ 2022年度に実施した試験の一覧

長期挙動試験や依存性確認(STEP3)を中心に試験を実施

気中/水中	試験No.	種類	試験条件のねらい		その他試験条件
■ 模擬燃料デブリ (種類2) : $Zr(O) + (U,Zr)O_2$					
気中試験	O-30	2	②環境条件範囲：湿度	実温度の乾燥空気中での変化を確認	50°C/500h 乾燥空気
	O-31	2	③長期挙動：長期加速試験	数十年間の経年変化を確認	130°C/最大2500h
	O-38	2	②環境条件範囲：湿度	湿潤窒素中での変化を確認	110°C/100h
■ 模擬燃料デブリ (種類10) : $FeO + (U,Zr)O_2$ (種類101は $FeO/(U,Zr)O_2$ 比を変えたもの)					
気中試験	O-32	101	①組成範囲： $FeO/(U,Zr)O_2$ 比	$FeO/(U,Zr)O_2$ 比を1点追加	110°C/100h
	O-33	10	②環境条件範囲：酸素分圧	N_2 中+10% O_2 を追加	110°C/100h
	O-34		③長期試験：加速因子の確認	実温度試験による加速効果の確認	50°C/500h
	O-35			加速温度依存性を2点追加し、加速倍率を確認	120°C/100h
	O-36			130°C/100h	
■ 模擬燃料デブリ (種類93) : $FeO + (U,Zr)O_2$ 介在ガラス状燃料デブリ					
気中試験	O-37	93	②環境条件範囲：酸素分圧	N_2 中+10% O_2 を追加	110°C/100h
■ 模擬燃料デブリ (種類91) : $(U,Zr)O_2$ 介在ガラス状燃料デブリ (種類913は $(U,Zr)O_2/SiO_2$ 比を変えたもの)					
水中試験	L-30	913	①組成範囲： $(U,Zr)O_2/SiO_2$ 比	組成を1点追加	90°C/100h
	L-32	91	③長期挙動：長期加速試験	約十年間の経年変化を確認	90°C/最大3000h
	L-33	91	②環境条件範囲：わずかな水流	わずかな水流による変化有無	80°C/100h
■ 模擬燃料デブリ (種類93) : $FeO + (U,Zr)O_2$ 介在ガラス状燃料デブリ					
水中試験	L-31	93	②環境条件範囲：平衡酸素分圧	N_2 中+10% O_2 を追加	90°C/100h

5. 実施内容

(1) 微粒子化現象が生じる境界領域を見出し、長期予測性を向上させるための試験方法の立案と実施

◆ 検討対象項目

試験材質	試験方法	① 材料条件の検討	② 環境条件の検討	③ 長期予測性向上の加速試験
Zr(O)+(U,Zr)O ₂	気中試験	<ul style="list-style-type: none"> ・Zr(O)/(U,Zr)O₂比を変数とした試験データ取得済【●】 	<ul style="list-style-type: none"> ・酸素分圧依存性データを取得済【●】 ・空気湿潤影響データを取得【○】 	<ul style="list-style-type: none"> ・温度依存性データ取得【前事業で完了】 ・長時間試験データ取得【○】
FeO+(U,Zr)O ₂ *	気中試験	<ul style="list-style-type: none"> ・FeO/(U,Zr)O₂比を変数とした試験データ取得済【◎】 	<ul style="list-style-type: none"> ・酸素分圧依存性データを取得【○】 	<ul style="list-style-type: none"> ・温度依存性データを取得【○】
(U,Zr)O ₂ 介在ガラス状燃料デブリ	水中試験	<ul style="list-style-type: none"> ・(U,Zr)O₂/SiO₂比を変数とした試験データ取得済【◎】 	<ul style="list-style-type: none"> ・平衡酸素分圧依存性データを取得済【●】 ・ホウ酸影響試験済【●】 ・水流付与試験済【◎】 	<ul style="list-style-type: none"> ・温度依存性データ取得【前事業で完了】 ・長時間試験データ取得【○】
FeO+(U,Zr)O ₂ 介在ガラス状燃料デブリ	水中試験	<ul style="list-style-type: none"> ・(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの結果から推定【○】 	<ul style="list-style-type: none"> ・水中試験後乾燥の影響試験済み【●】 ・平衡酸素分圧依存性データを取得済み【◎】 	<ul style="list-style-type: none"> ・(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの結果から推定【○】
	気中試験*	<ul style="list-style-type: none"> ・FeO+(U,Zr)O₂の結果と比較して推定【○】 	<ul style="list-style-type: none"> ・酸素分圧依存性データを取得【○】 	<ul style="list-style-type: none"> ・FeO+(U,Zr)O₂の結果と比較して推定【○】

【●】2021年度完了、【◎】2022年度上期完了、【○】2022年度下期完了

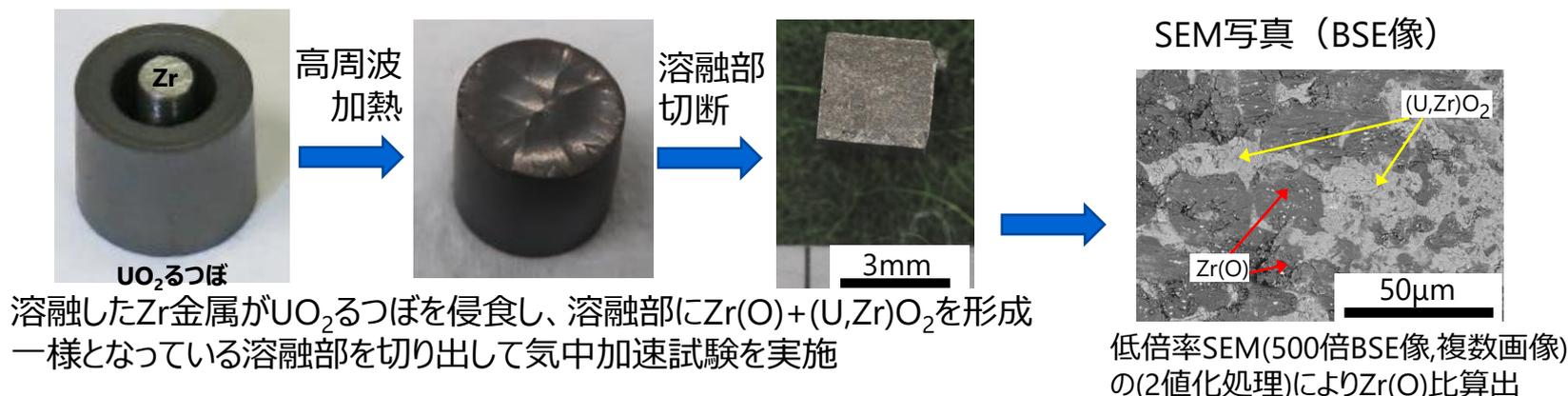
5. 実施内容

(1) ①燃料デブリの組成や相状態の範囲の検討

Zr(O)₂ + (U,Zr)O₂の気中経年変化(組成範囲)

✓ Zr(O)₂ + (U,Zr)O₂のZr(O)₂/(U,Zr)O₂比を系統的に変化させ、微粒子化範囲を検討

Zr(O)₂ + (U,Zr)O₂模擬燃料デブリの作製



溶融したZr金属がUO₂るつぼを侵食し、溶融部にZr(O)₂ + (U,Zr)O₂を形成一様となっている溶融部を切り出して気中加速試験を実施

各模擬燃料デブリの作製条件 (加熱温度・時間・界面面積により侵食量を制御し、Zr(O)比率を変化)

試験ID	試料種類	UO ₂ るつぼ重量 g	Zr金属棒重量 g	加熱条件(高周波炉)	Zr(O)表面積比 (=Zr(O) ₂ /(Zr(O) ₂ + (U,Zr)O ₂)
O-9(前事業)	種類21	6.9	0.26	2300°C×10min	0.17±0.04(再評価)
O-22	種類24	6.9	0.26	2200°C×10min	0.19±0.03
O-H2(前事業)	種類2	6.9	0.25	2100°C×10min	0.41±0.02(再評価)
O-21	種類23	6.9(大容量るつぼ)	0.63	2050°C×10min	0.56±0.05

その他高周波炉の共通加熱条件：Ar雰囲気、昇降温速度200°C/min。

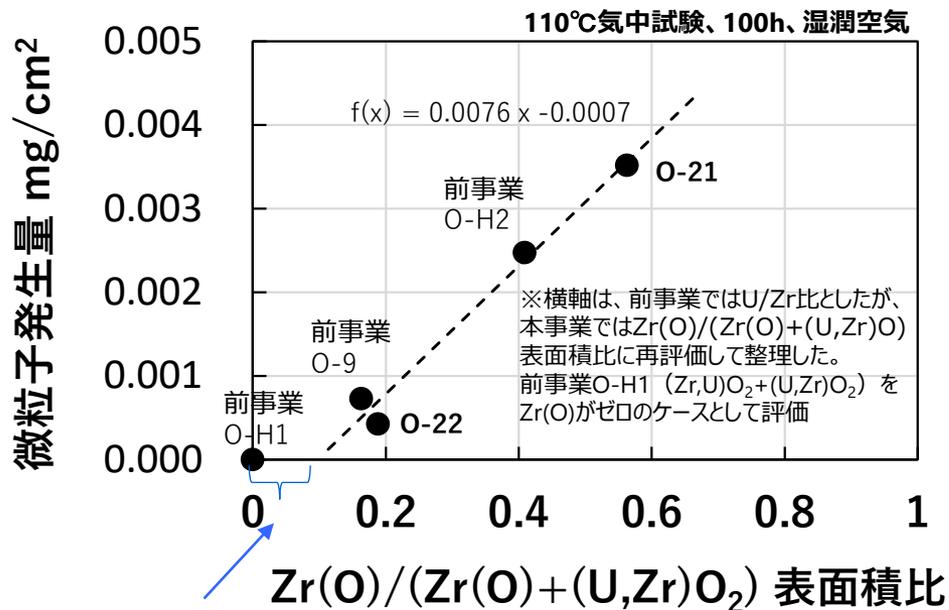
誤差は最も大きい誤差である読取誤差を表記

5. 実施内容

(1) ①燃料デブリの組成や相状態の範囲の検討

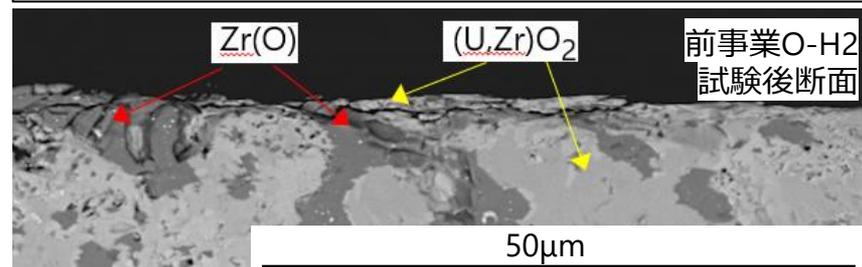
Zr(O) + (U,Zr)O₂の気中経年変化(材料条件)

微粒子発生量と材料条件との関係



前事業における微粒子化メカニズムの考察

- ✓ 微粒子発生は、Zr(O)部分の酸化→**Zr(O)部分の亀裂生成が要因**
- ✓ Zr(O)部分の亀裂生成が、より硬い(U,Zr)O₂へ進展し、Zr(O)も(U,Zr)O₂も微粒子化



微粒子化は生じないと考えられる。

✓ Zr(O)表面積比に比例して、微粒子発生量が増加した。

✓ Zr(O)/(Zr(O)+(U,Zr)O₂) = 0.09が、微粒子発生の境界条件と考えられる。

✓ 微粒子発生量の燃料デブリ組成依存性fは、表面積比 $x = \text{Zr(O)} / (\text{Zr(O)} + (\text{U,Zr})\text{O}_2)$ として、 **$f(x) = 0.0076x - 0.0007$ ($x > 0.09$)、 $f(x) = 0$ ($x \leq 0.09$)**という定量式で表される。ただし、適用範囲は、 $0 \leq x \leq 0.56$ (確認範囲)

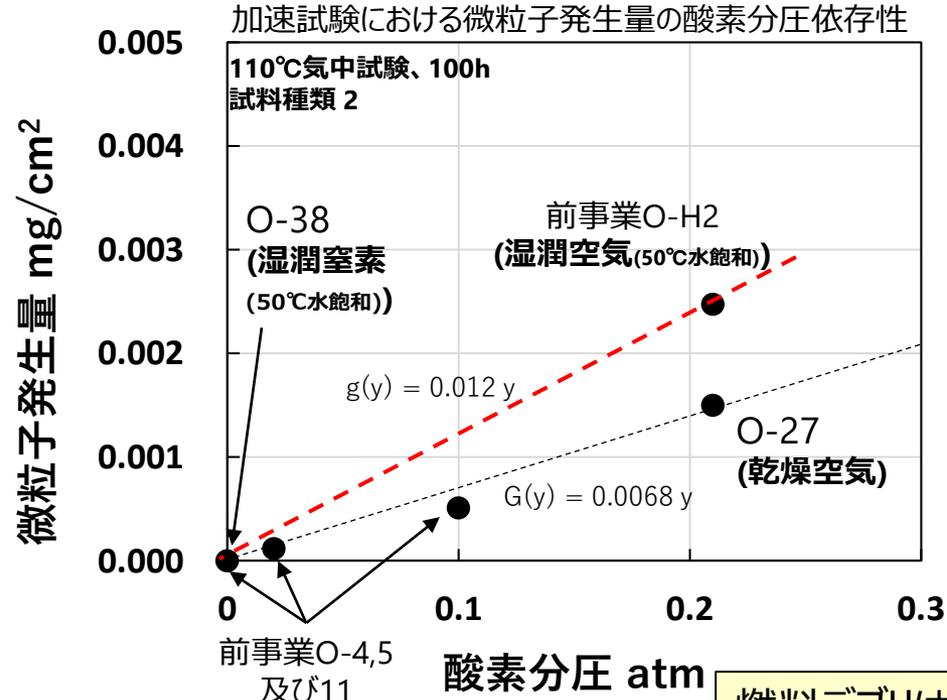
5. 実施内容

(1)②微粒子化を発生する環境条件範囲の検討

▶ Zr(O) + (U,Zr)O₂の気中経年変化(環境条件)

✓ 気中酸素分圧を変化させて依存性を検討

- ・ 気中酸素分圧に比例して増加、乾燥空気/湿潤空気による差を確認(O-27試験)
- ・ 乾燥窒素下と同様に、湿潤窒素下でも微粒子発生は確認できない(O-38試験)



湿潤による微粒子発生加速メカニズムの考察

- ✓ 水蒸気添加のみでは、微粒子発生に至らない。
- ✓ 水蒸気添加は、空気による微粒子化を促進する。

↓

- ✓ わずかな水蒸気の表面付着によって酸化ポテンシャルが低下し、酸素による影響を促進した可能性が考えられる。
- ✓ 酸素が無ければ微粒子化は発生しないため、乾燥条件と同様に、湿潤環境でも酸素量に比例した微粒子発生量となると考えられる。

燃料デブリは湿潤空気下に置かれるため、図の赤点線を採用し、微粒子発生量の酸素分圧依存性 g は、 y を酸素分圧(atm)として、
 $g(y) = 0.012y$
 という定量式で表される。適用範囲は、 $0 \leq y \leq 0.21$

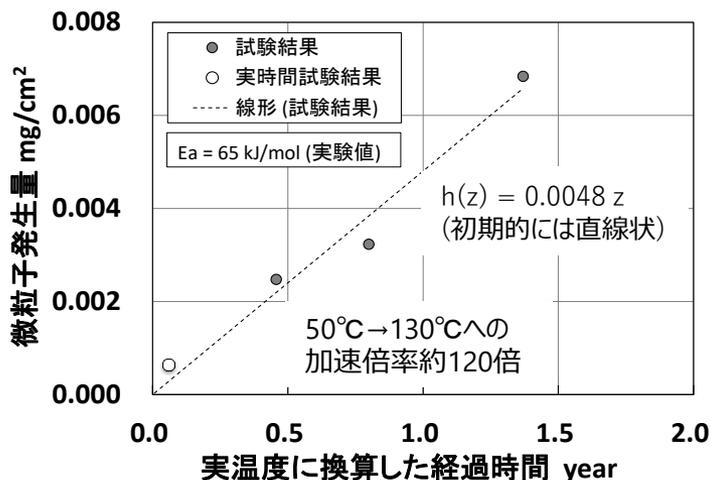
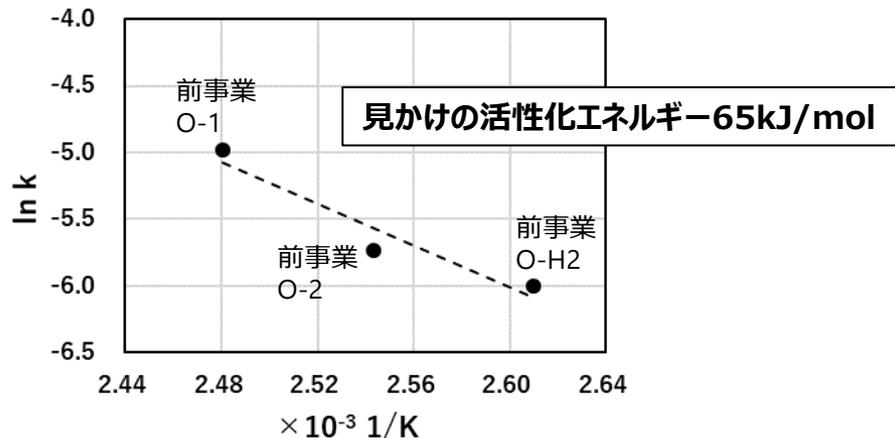
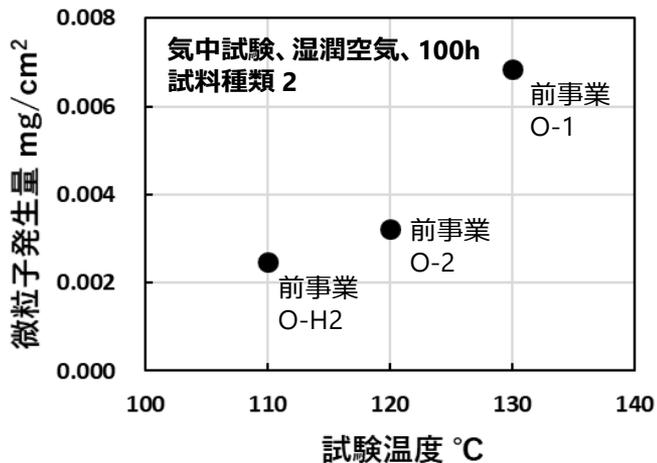
5. 実施内容

(1)③長期予測性を向上させるための加速試験の実施

Zr(O) + (U,Zr)O₂の気中経年変化(長期挙動)

✓ 加速試験をなるべく長時間実施して長期挙動を検討

加速倍率の設定 (前事業成果にて実施)



微粒子発生量の温度依存性データから、各温度での反応速度定数 k を、微粒子発生量 = $k \times$ (規格化酸素分圧) として定め、 $\ln k$ と絶対温度の逆数のプロットから、みかけの活性化エネルギーを算出した。

Zr酸化の活性化エネルギーは約120kJ/molであるが、劣化層が剥離を続けるケースのみかけの活性化エネルギーは40~70 kJ/molとの報告※もある。ここでは、微粒子発生量の活性化エネルギー E_a を65 kJ/molとした。
※J.L. Vandegrift, et al., Nucl. Mater. Ener., 20(2019)100692

加速試験の加速倍率は、 $\exp[(E_a/R)(1/T - 1/T')]$ にて定めた。燃料デブリの気中保管時の温度を50°Cと考えた場合、130°Cでの加速試験の加速倍率は120倍となる。

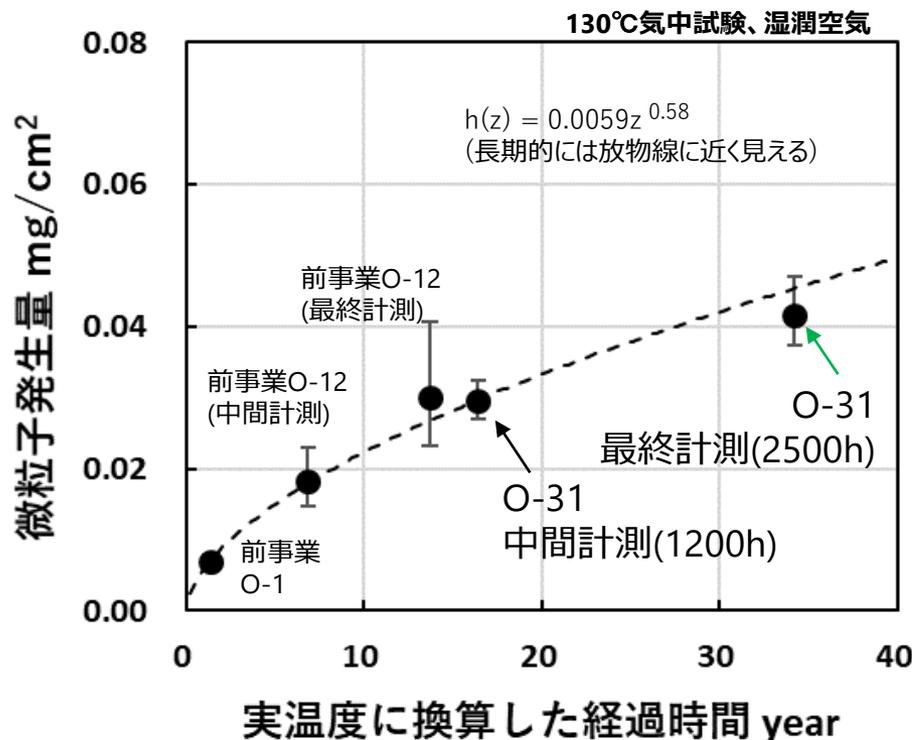
5. 実施内容

(1)③長期予測性を向上させるための加速試験の実施

▶ Zr(O)+(U,Zr)O₂の気中経年変化(長期挙動)

O-31試験：気中におかれる燃料デブリの実温度を50℃と考え、130℃(加速倍率約120倍)にて、2500時間の加速試験(実時間換算34年)を実施。

- ✓ O-31試験では、1200時間経過時に、一旦、微粒子を回収して、微粒子発生量を中間計測。
- ✓ 前事業では最大1000時間の試験を実施しており、同時にプロットしている。



- ▶ 本事業で得られたデータのうち、誤差が最も大きいデータは長期試験データとなるため、縦軸誤差と横軸誤差を評価した。
- ▶ このうち縦軸誤差の支配的要因は、電子顕微鏡による微粒子面積の読み取り誤差であるため、その誤差を図示した。

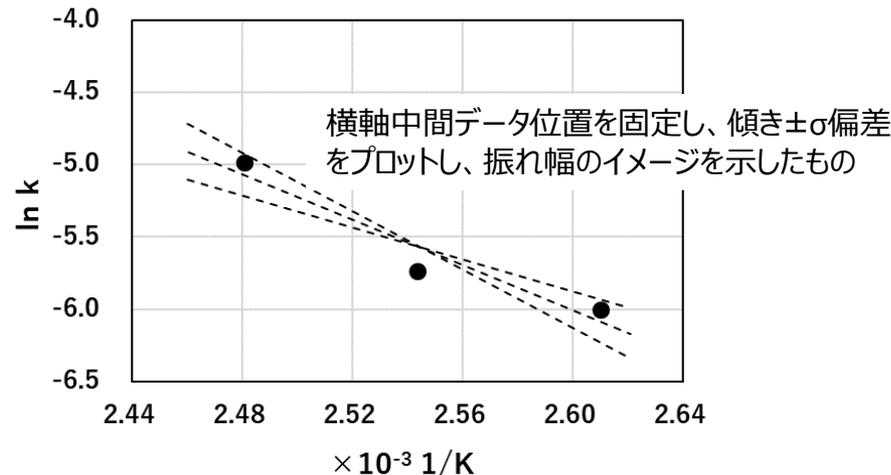
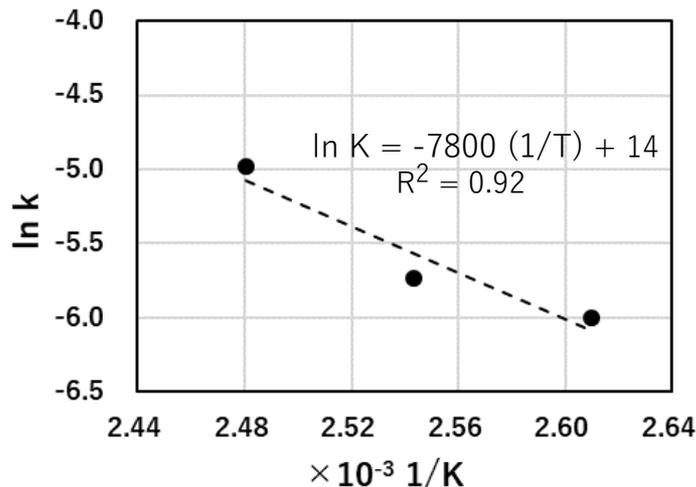
- ▶ 経過時間が増すと微粒子発生速度の低下が見られた。指数関数にフィッティングしたところ、経過時間の0.58乗に比例した。微粒子発生量の経過時間依存性 h は、 z を経過時間(年)として、
 $h(z) = 0.0059z^{0.58}$
という定量式で表される。適用範囲は、
 $0 \leq z \leq 34$ (確認範囲)

5. 実施内容

(1)③長期予測性を向上させるための加速試験の実施

▶ Zr(O) + (U,Zr)O₂の気中経年変化(長期挙動)

- 本事業で得られたデータのうち、誤差が最も大きいデータは長期試験データとなる。
- **横軸誤差**の支配的要因は、活性化エネルギーへのフィッティング誤差であるため、その誤差を検討した。



アレニウスプロットの傾きの標準偏差 $\pm\sigma$ を以下によって計算した。

$$\sigma = \sqrt{(\Sigma (y - (\beta x + \alpha))^2 / \Sigma (x - \bar{x})^2)}$$
 ここで \bar{x} は平均値

その結果、活性化エネルギー 65 ± 19 kJ/mol
加速倍率(50°C→130°C) 120 (30~490) 倍
長期試験予測年数 34 (9~140) 年

となり、 $h(z) = 0.0059z^{0.58}$ に従うとして**予測年数誤差を縦軸に換算**すると、

34年後の縦軸誤差 0.042 (0.020~0.099) (ファクタ約2)

となる。

括弧内は誤差範囲 $\pm\sigma$ を示す

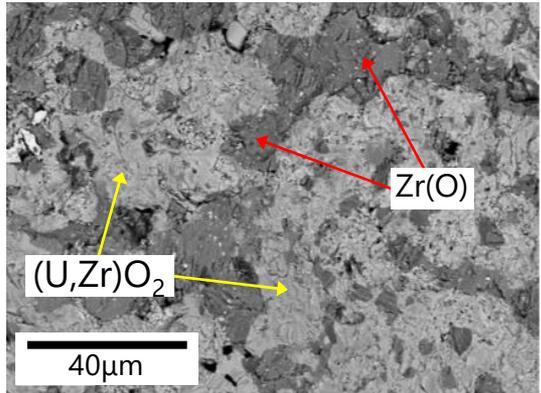
今後、精密な予測を行うためには、温度依存性データの拡充が重要となる。

5. 実施内容

(1)③長期予測性を向上させるための加速試験の実施

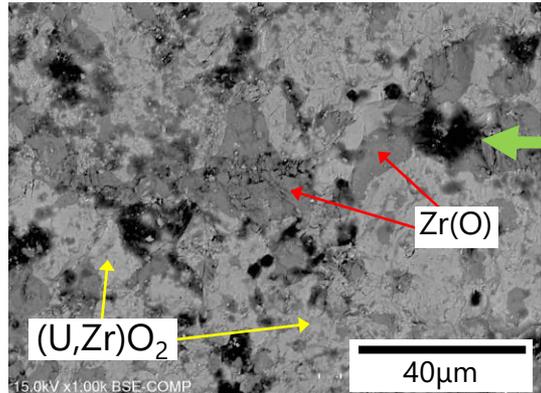
▶ Zr(O) + (U,Zr)O₂の気中経年変化(長期挙動)

O-31試験：2500時間試験後の試料表面観察



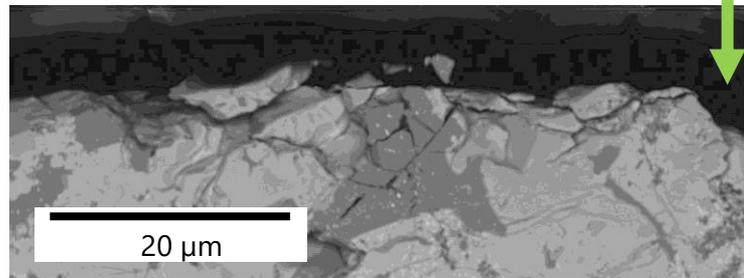
同等組成(種類2)の試験前試料表面SEM(BSE像)

長期試験



試験後試料表面SEM(BSE像)

黒い(凹み)部分の底面は(U,Zr)O₂となっていると見られる。



試験後試料断面SEM(BSE像)

	Zr(O)表面積比 (=Zr(O)/(Zr(O)+(U,Zr)O ₂))
試験前試料	0.41 (0.39~0.43)
試験後試料	0.27 (0.18~0.31)

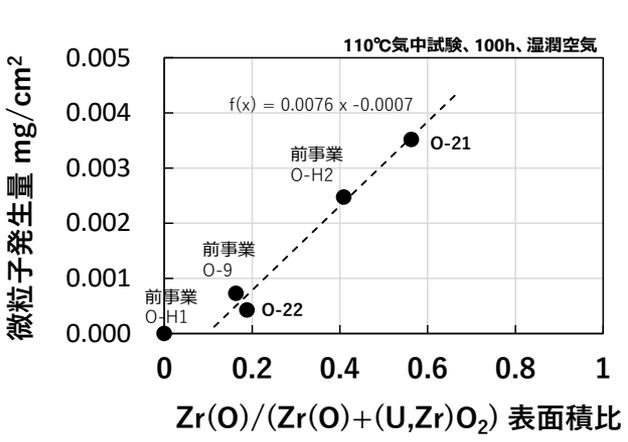
() 内は読取り誤差。試験後試料は黒色部分の判断の差を含む

- ▶ 長期試験により、表層のZr(O)表面積比の低下がみられた。
- ▶ この低下により、微粒子発生的重要因素であるZr(O)部分における亀裂生成が減ったことが、長期時間経過とともに微粒子発生速度が低下した原因であると考えられる。

5. 実施内容

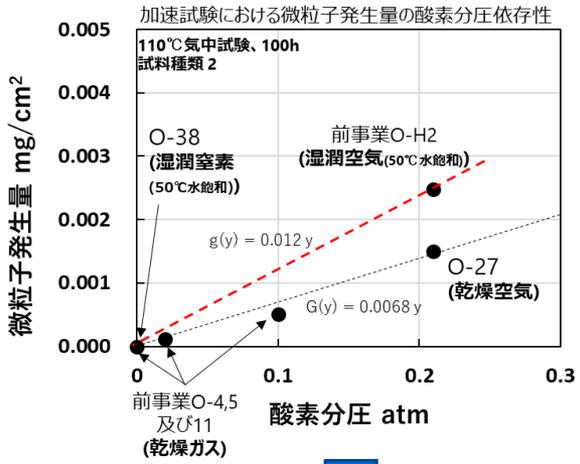
(2) 1F燃料デブリにおける経年変化の推定

Zr(O)+(U,Zr)O₂の気中経年変化の定式化



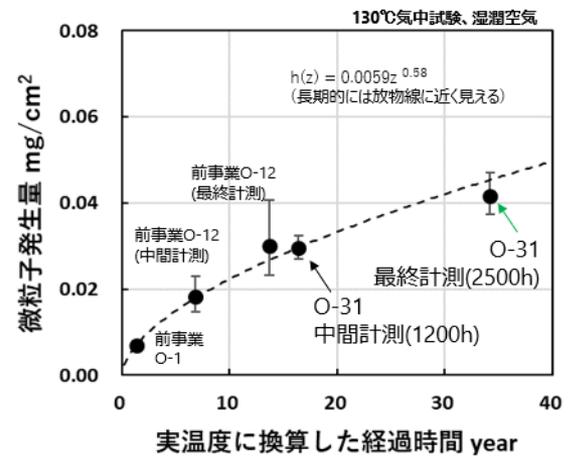
組成依存性の定量式 f

$x = \text{Zr(O)} / (\text{Zr(O)} + (\text{U,Zr})\text{O}_2)$ として、
 $f(x) = 0.0076x - 0.0007$ $0.09 \leq x \leq 0.56$



酸素分圧依存性の定量式 g

y: 酸素分圧(atm)として、 $g(y) = 0.012y$
 適用範囲 $0 \leq y \leq 0.21$



時間依存性の定量式 h

z: 経過時間yearとして、 $h(z) = 0.0059z^{0.58}$
 適用範囲 $0 \leq z \leq 34$

f、g、hが独立の場合、微粒子発生条件範囲と経年変化を示す定量式Rは、 $f/A \times g/A \times h$ (Aは規格化定数)

hは、Zr(O)の表面積比の時間変化に応じて減少しているため、hは独立ではないが、ここでは初歩的な近似として、まず、それぞれが独立であるとして、微粒子発生条件範囲と経年変化を表す定式化を示すと以下となる。

$$R(x,y,z) = 1.64 \times 10^5 \times (0.0076x - 0.0007) \times 0.012y \times 0.0059z^{0.58}$$

(変数の従属性を考慮しない暫定式)

xはZr(O)/(Zr(O)+(U,Zr)O₂)表面積比、yは酸素分圧(atm)、Zは経過時間(年)
 適用範囲、 $0.09 \leq x \leq 0.56$ (確認範囲)、 $0 \leq y \leq 0.21$ 、 $0 \leq z \leq 34$ (確認範囲)

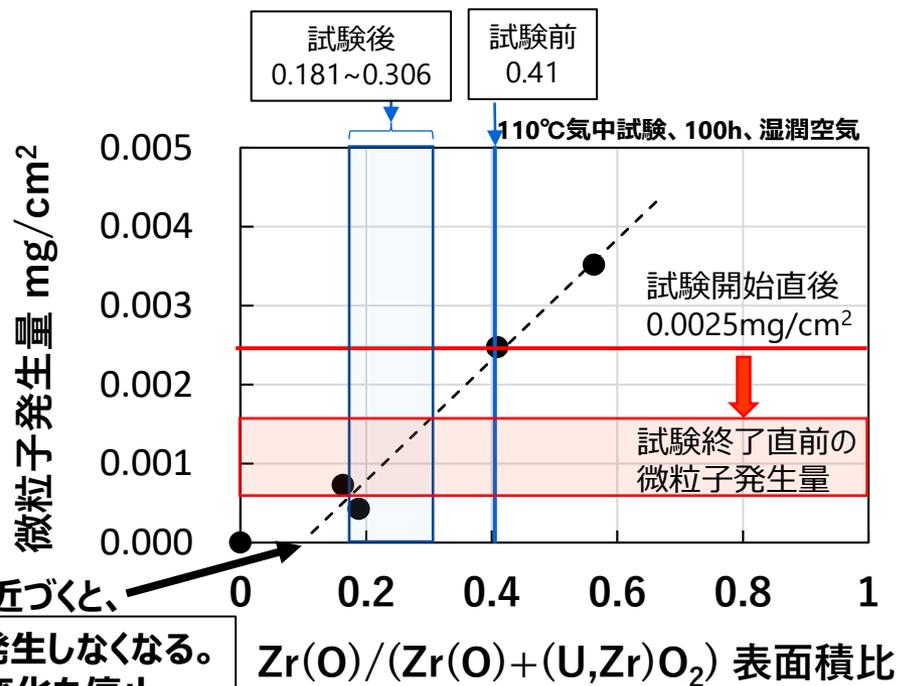
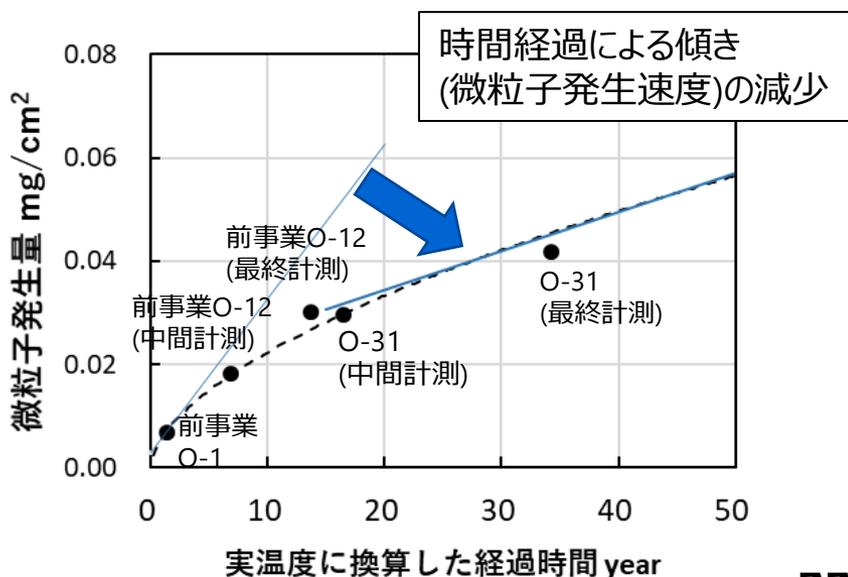
5. 実施内容

(2) 1F燃料デブリにおける経年変化の推定

Zr(O)+(U,Zr)O₂の気中経年変化の定式化

従属性の検討

- 長期試験により、表層のZr(O)表面積比の低下がみられた。
- この低下により、微粒子発生 の要因であるZr(O)部分における亀裂生成が減ったことが、長期時間経過とともに微粒子発生速度が低下した原因であると考えられる。



- 微粒子は発生しなくなる。
- 表面積比変化も停止。

- このままO-31長期試験を継続すると、微粒子の発生速度はさらに低下し、傾きはゼロに近づき、微粒子発生量は一定値に近づくと見られる。

5. 実施内容

(2) 1F燃料デブリにおける経年変化の推定

Zr(O)+(U,Zr)O₂の気中経年変化の定式化

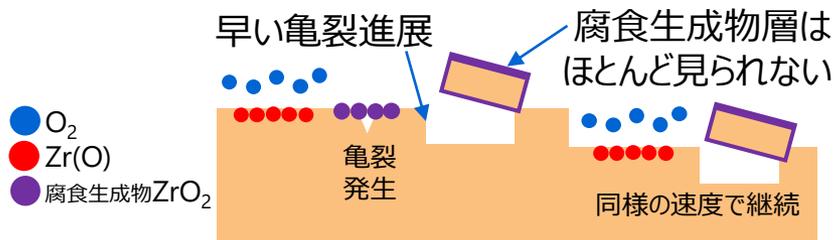
従属性の検討

微粒子発生量の上限値を生じるメカニズム

- ・反応進行を阻害する腐食生成物層形成より早い亀裂進展
- ・微粒子発生に伴い、**表層の反応因子の欠乏層が増加し**、反応頻度が減少

短期的な状態

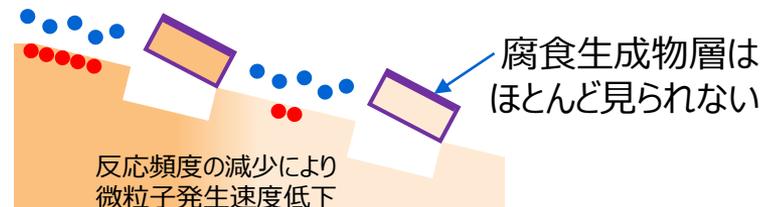
- ✓ 腐食生成物層形成より早い亀裂進展
- ✓ 微粒子はほぼ素材どおりの成分比



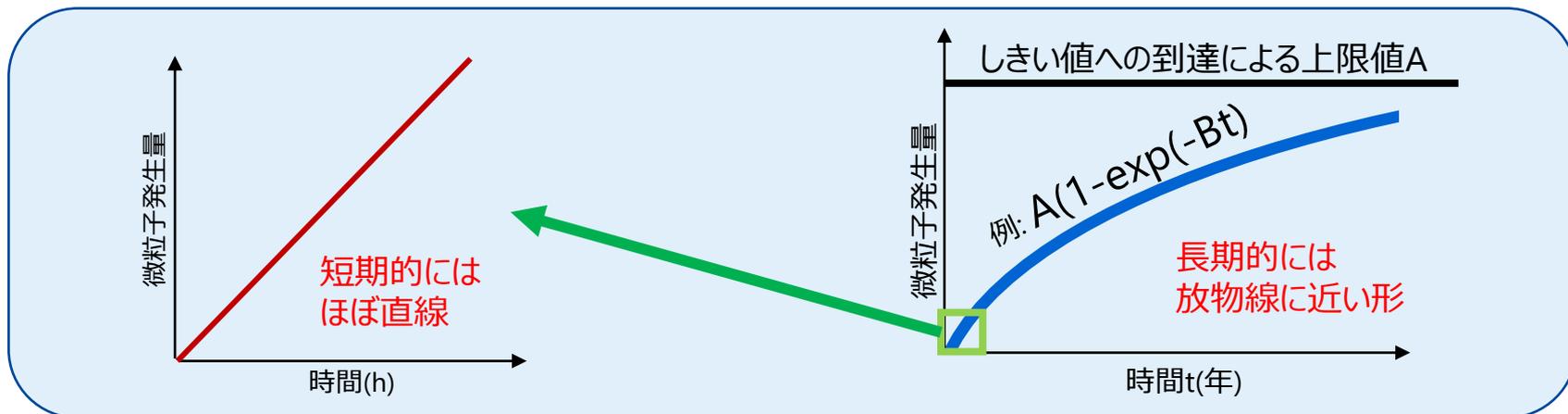
- ✓ 反応速度の経年変化は小さい

年単位の経年変化

- ✓ 微粒子発生に伴い、表層のZr(O)が少しずつ減少
- ✓ Zr(O)の減少によって微粒子発生量は低下
- ✓ 反応頻度の低下であり、微粒子発生過程は同じ



- ✓ 最終的に、反応のしきい値での停止に近づく



5. 実施内容

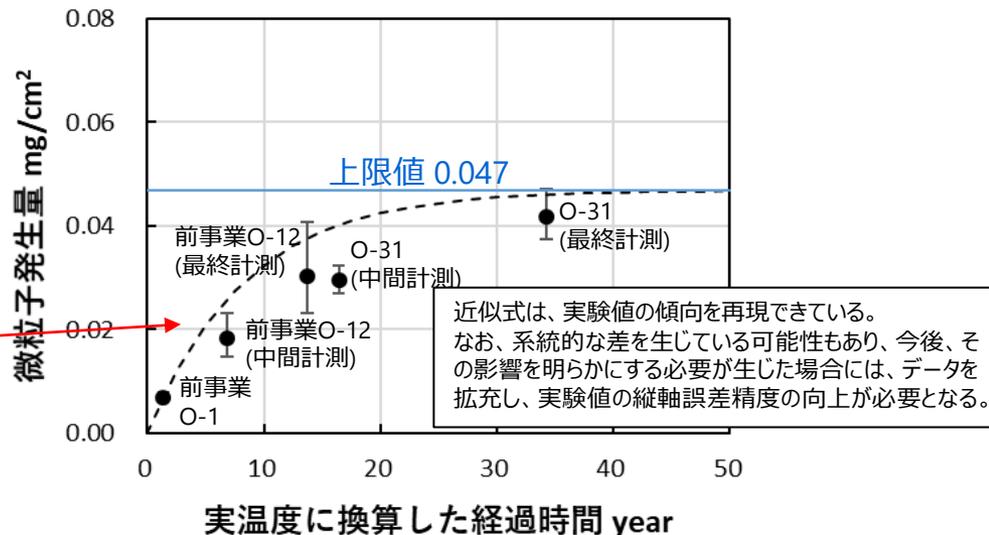
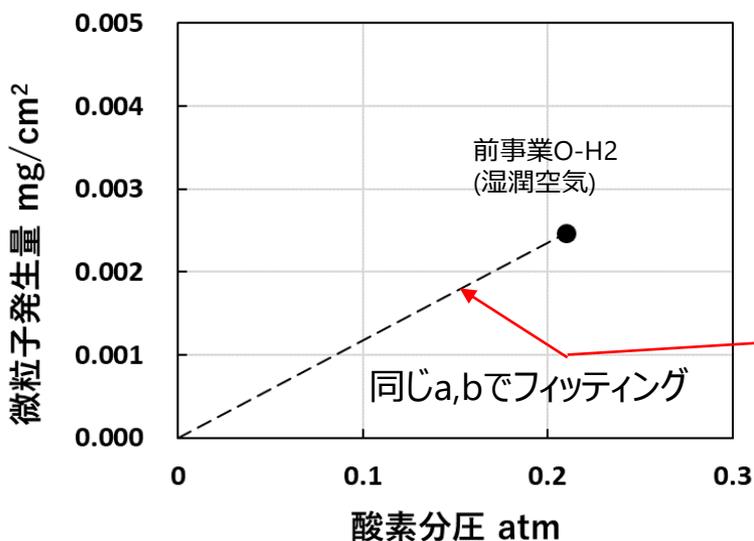
(2) 1F燃料デブリにおける経年変化の推定

Zr(O)+(U,Zr)O₂の気中経年変化の定式化

従属性の検討

➤ このまま長期試験を継続すると、微粒子の発生速度はさらに低下し、傾きはゼロに近づくと見られる。

- ✓ 経過時間zに対する微粒子発生量Rのフィッティングを考えた場合、上限値Aが存在する。このとき、上限を有する式の形として、 $R(x,z) = A(1-\exp(-Bz))$ (Bは定数,y=0.21に固定した場合) を考える。
 - ✓ 酸素分圧yは、yが大きいと早く上限値に達し、yが小さいと上限値に達するのが遅くなるため、yとzの積に応じて上限値に近づいていくと考えられる。従って、式の形は、 $R(x,y,z) = A(1-\exp(-byz))$ (bは定数)
 - ✓ 上限値はZr(O)表面積比xに依存するため、Aは(0.0076x-0.0007)を因子とする。
- ⇒ 以上から、式の形は、 $R(x,y,z) = a(0.0076x-0.0007)(1-\exp(-byz))$ (aは定数)
フィッティングを行ってa,bを定め、 $R(x,y,z) = 19.4 \times (0.0076x-0.0007) \times (1-\exp(-0.56yz))$



従属性を考慮したZr(O)+(U,Zr)O₂からの微粒子発生量 $R(x,y,z) = 19.4 \times (0.0076x-0.0007) \times (1-\exp(-0.56yz))$

xはZr(O)/(Zr(O)+(U,Zr)O₂)表面積比、yは酸素分圧(atm)、zは経過時間(年)
適用範囲、 $0 \leq x \leq 0.56$ (確認範囲)、 $0 \leq y \leq 0.21$ 、 $0 \leq z \leq 34$ (確認範囲)
なお、経過年数誤差から微粒子発生量は最大ファクタ約2の誤差を有する

5. 実施内容

(1) 微粒子化現象が生じる境界領域を見出し、長期予測性を向上させるための試験方法の立案と実施

◆ 検討対象項目

試験材質	試験方法	① 材料条件の検討	② 環境条件の検討	③ 長期予測性向上の加速試験
Zr(O)+(U,Zr)O ₂	気中試験	<ul style="list-style-type: none"> ・Zr(O)/(U,Zr)O₂比を変数とした試験データ取得済【●】 	<ul style="list-style-type: none"> ・酸素分圧依存性データを取得済【●】 ・空気湿潤影響データを取得【○】 	<ul style="list-style-type: none"> ・温度依存性データ取得【前事業で完了】 ・長時間試験データ取得【○】
FeO+(U,Zr)O ₂ *	気中試験	<ul style="list-style-type: none"> ・FeO/(U,Zr)O₂比を変数とした試験データ取得済【◎】 	<ul style="list-style-type: none"> ・酸素分圧依存性データを取得【○】 	<ul style="list-style-type: none"> ・温度依存性データを取得【○】
(U,Zr)O ₂ 介在ガラス状燃料デブリ	水中試験	<ul style="list-style-type: none"> ・(U,Zr)O₂/SiO₂比を変数とした試験データ取得済【◎】 	<ul style="list-style-type: none"> ・平衡酸素分圧依存性データを取得済【●】 ・ホウ酸影響試験済【●】 ・水流付与試験済【◎】 	<ul style="list-style-type: none"> ・温度依存性データ取得【前事業で完了】 ・長時間試験データ取得【○】
FeO+(U,Zr)O ₂ 介在ガラス状燃料デブリ	水中試験	<ul style="list-style-type: none"> ・(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの結果から推定【○】 	<ul style="list-style-type: none"> ・水中試験後乾燥の影響試験済み【●】 ・平衡酸素分圧依存性データを取得済み【◎】 	<ul style="list-style-type: none"> ・(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの結果から推定【○】
	気中試験*	<ul style="list-style-type: none"> ・FeO+(U,Zr)O₂の結果と比較して推定【○】 	<ul style="list-style-type: none"> ・酸素分圧依存性データを取得【○】 	<ul style="list-style-type: none"> ・FeO+(U,Zr)O₂の結果と比較して推定【○】

*TENEXの前事業報告を受けて追加した試験対象

【●】2021年度完了、【◎】2022年度上期完了、【○】2022年度下期完了

5. 実施内容

(1) ①燃料デブリの組成や相状態の範囲の検討

▶ FeO+(U,Zr)O₂の気中試験（材料条件）

TENEXの試験結果を参考に本事業で初めて微粒子化の発生を見出した組成

✓ FeO+(U,Zr)O₂のFeO/(U,Zr)O₂比を変化させて、微粒子化範囲を検討

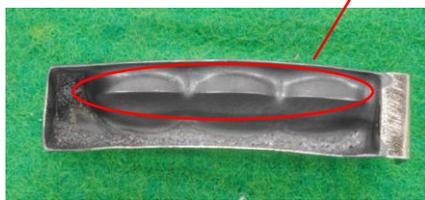
FeO+(U,Zr)O₂模擬燃料デブリの作製

作製
手順

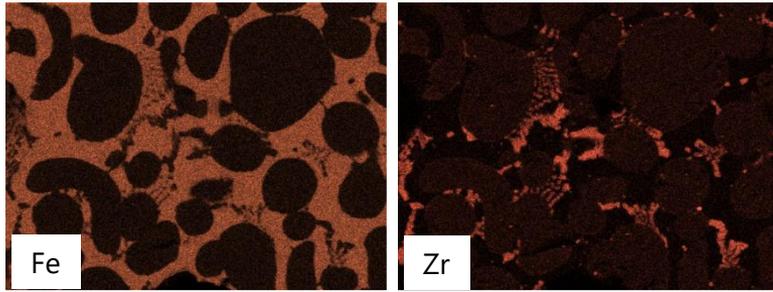
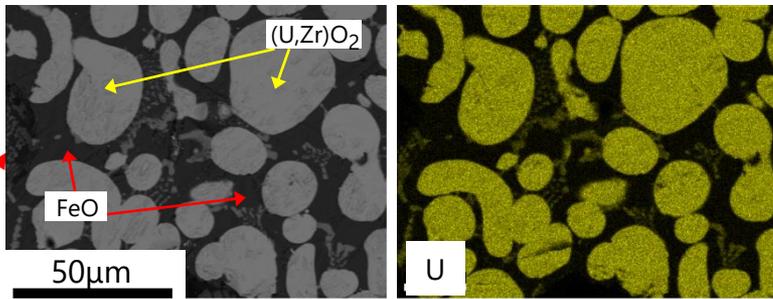
- (1) (U,Zr)O₂粉末作製 UO₂とZrO₂混合粉末プレス体(U:Zr=約95:5)を2200°C焼成後、粉末化
- (2) 粉末混合 FeO粉末と(U,Zr)O₂粉末混合（種類10はモル比1:1、種類101は1:2）
- (3) ケラマックス炉焼成 種類10は、1550°C/10min、種類101は1600°C/10min
Ar+1%H₂(20°C水飽和)雰囲気、昇温速度6°C/min、降温速度200°C/min以上



13mmφプレス体をPtボートに装荷

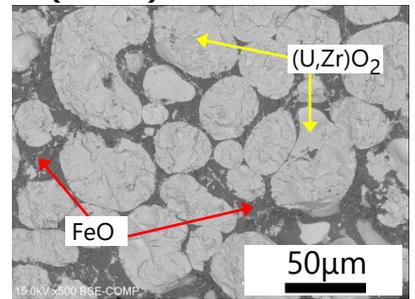


SEM-EDS分析結果（種類10）



Zrは、(U,Zr)O₂部分から、FeO部分の一部に若干移動した。

SEM(BSE)像（種類101）



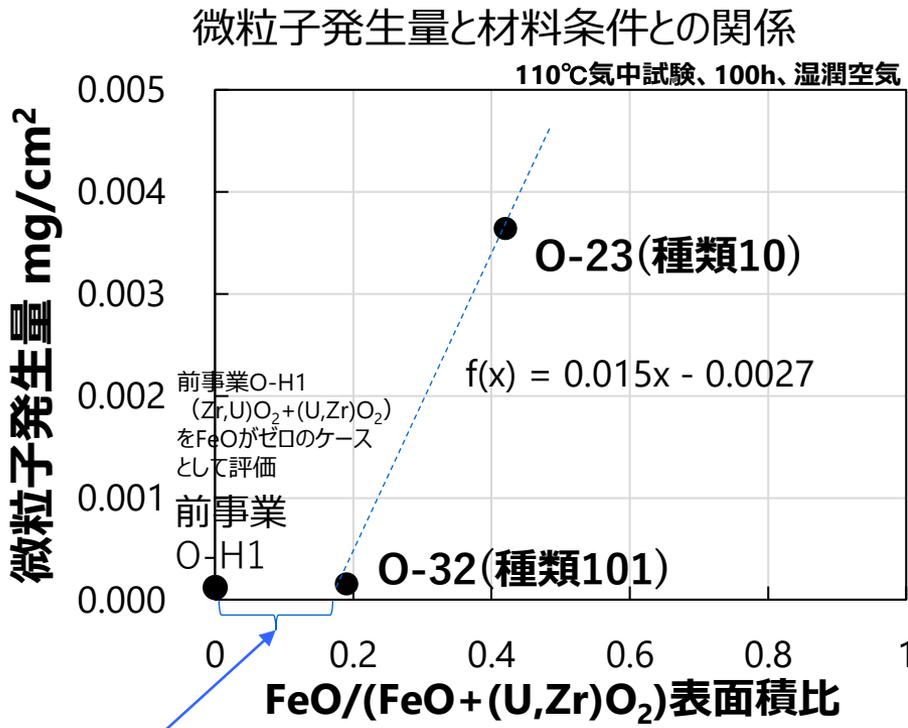
試料種類	FeO比 FeO/(FeO+U,ZrO ₂)
10	0.42±0.02
101	0.19±0.02

SEM(BSE)像の画像2値化により算出

5. 実施内容

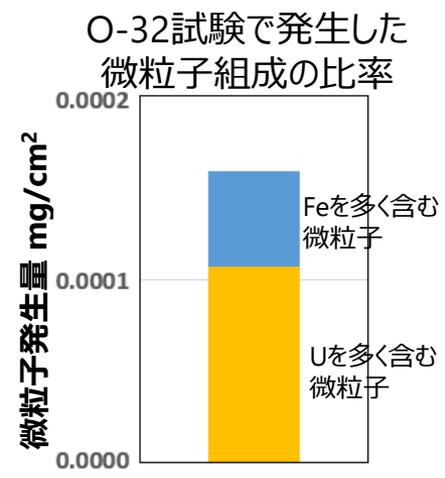
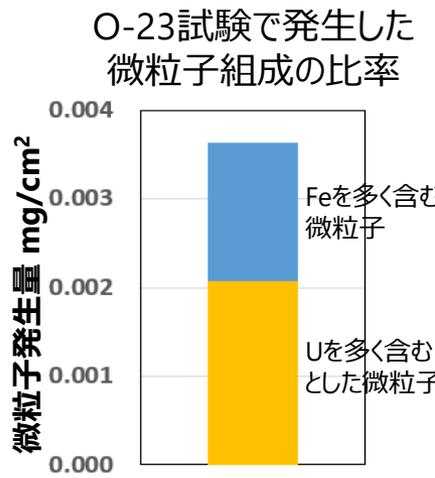
(1) ①燃料デブリの組成や相状態の範囲の検討

▶ FeO+(U,Zr)O₂の気中試験 (材料条件)

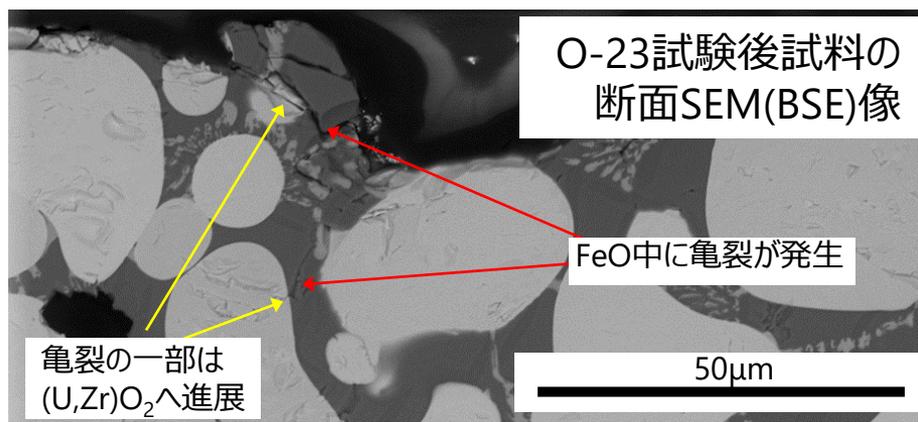


微粒子化は生じないと考えられる。

- ✓ FeO表面積比xに比例して、微粒子発生量が増加
- ✓ Zr(O)+(U,Zr)O₂と同様の微粒子化メカニズムであり、x=0.18を微粒子発生 of 閾値として、微粒子発生 of 組成依存性式は、以下となる。
 $f(x) = 0.015x - 0.0027$
 適用範囲は $0.18 \leq x \leq 0.42$ (確認範囲)



✓ 発生した微粒子組成の比率は、マイクロ組織の組成比率に近く、FeOも(U,Zr)O₂も微粒子化



- ✓ 微粒子発生は、**FeO部分の酸化→亀裂生成が要因**
- ✓ FeO部分の亀裂生成が、より硬い(U,Zr)O₂へ進展し、FeOも(U,Zr)O₂も微粒子化

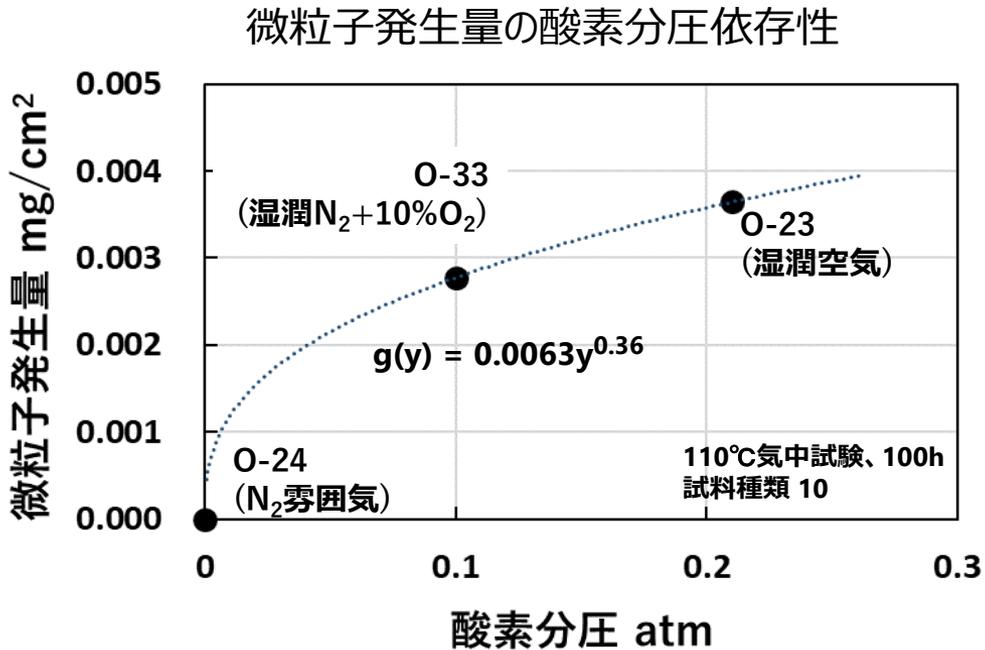
5. 実施内容

(1)②微粒子化を発生する環境条件範囲の検討

▶ FeO+(U,Zr)O₂の気中試験（環境条件）

✓ 気中酸素分圧依存性の検討

O-24、及びO-33試験：N₂、及びN₂+10%O₂雰囲気下での試験を追加し、微粒子発生量の酸素分圧依存式を設定



微粒子発生量の酸素分圧依存性gは、酸素分圧y(atm)の指数関数で表されるとした場合、
 $g(y)=0.0063y^{0.36}$
という定量式で表される。適用範囲は、 $0 \leq y \leq 0.21$

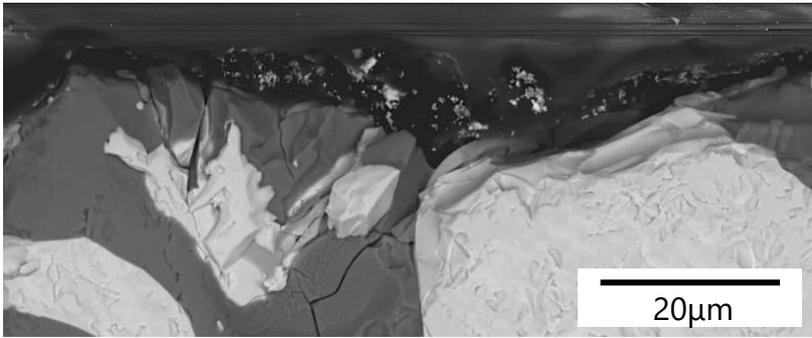
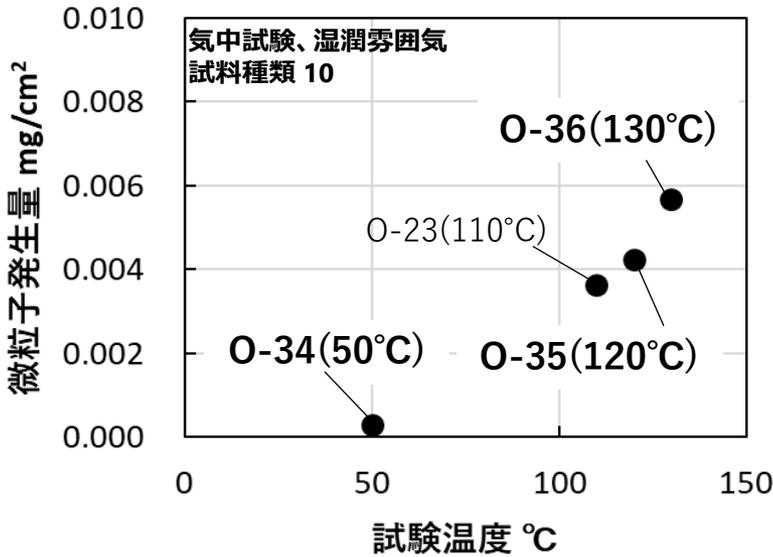
5. 実施内容

(1)②微粒子化を発生する環境条件範囲の検討 ③長期予測性を向上させるための加速試験の実施

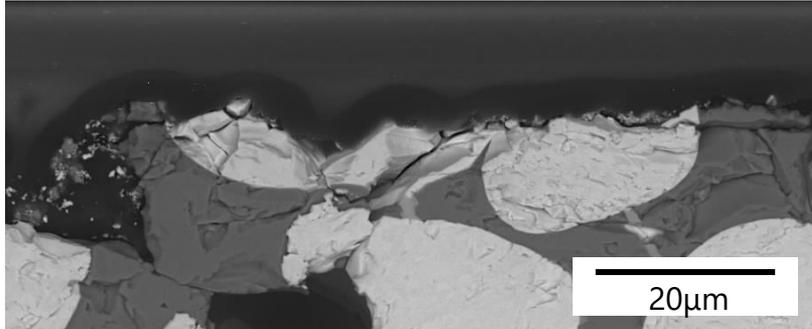
▶ FeO+(U,Zr)O₂の気中試験（長期挙動）

✓ 加速因子、活性化エネルギーを確認、得られたデータから長期挙動を推定

- O-34試験：実保管温度50℃にて500時間の試験を実施し、加速試験と同様のメカニズムを確認
- O-35,36試験：加速温度を120℃、130℃とした試験を追加し、微粒子発生量の温度依存性を測定



O-34(50℃)試験後試料断面SEM(BSE)像



O-36(130℃)試験後試料断面SEM(BSE)像

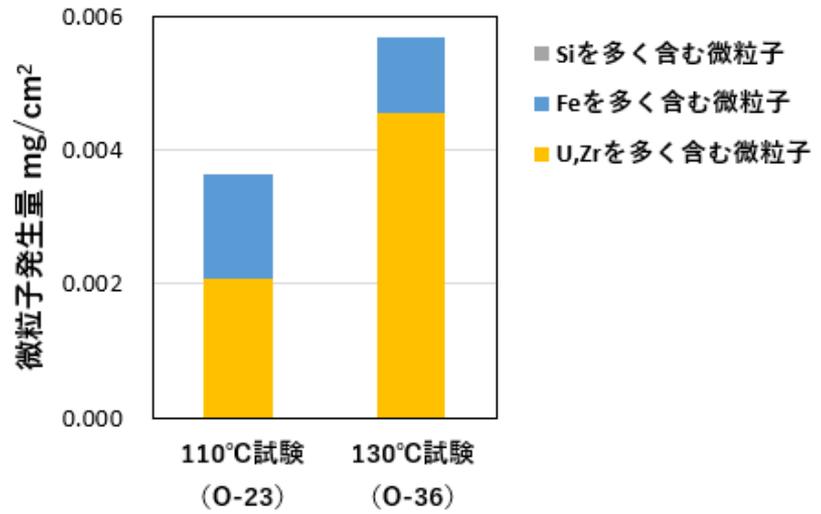
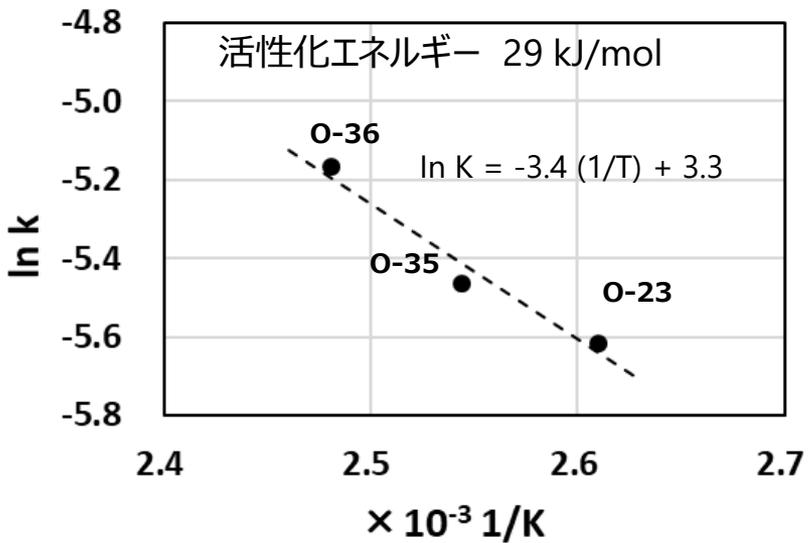
- ✓ 実時間試験と加速試験後の試料及び発生した微粒子を比較した所、同様の様相であり、同じメカニズムで微粒子化が発生したと考えられる。
- ✓ 腐食生成物層はみられず、腐食生成物層形成より早く、表層の微粒子化剥離が発生しているとみられる。
- ✓ FeOの酸化によって発生した亀裂が、(U,Zr)O₂に進展し、FeOと(U,Zr)O₂がともに微粒子化したとみられる。

5. 実施内容

(1)②微粒子化を発生する環境条件範囲の検討 ③長期予測性を向上させるための加速試験の実施

▶ FeO+(U,Zr)O₂の気中試験（長期挙動）

✓ 活性化エネルギーを確認。



前事業で得られた各模擬燃料デブリの活性化エネルギー

模擬燃料デブリの材質	環境	みかけの活性化エネルギー
Zr(O) + (U,Zr)O ₂	空気	65 kJ/mol
Fe析出ガラス状燃料デブリ	空気	24 kJ/mol
FeO析出ガラス状燃料デブリ	空気平衡水	36 kJ/mol
(U,Zr)O ₂ 介在ガラス状燃料デブリ	空気平衡水	50 kJ/mol

- ✓ 微粒子化の活性化エネルギーは29kJ/molであった。これは前事業におけるFeさび形成時の活性化エネルギーに近い。
- ✓ Feさび生成に伴ってU含有微粒子も発生しているものと考えられる。

微粒子発生メカニズムは、Zr(O)+(U,Zr)O₂の酸化要因であるZr(O)をFeOに置き換えたものと同様の特徴を有する。
ただし、活性化エネルギーの数値自体は低く、反応は比較的速やかに進行する可能性がある。

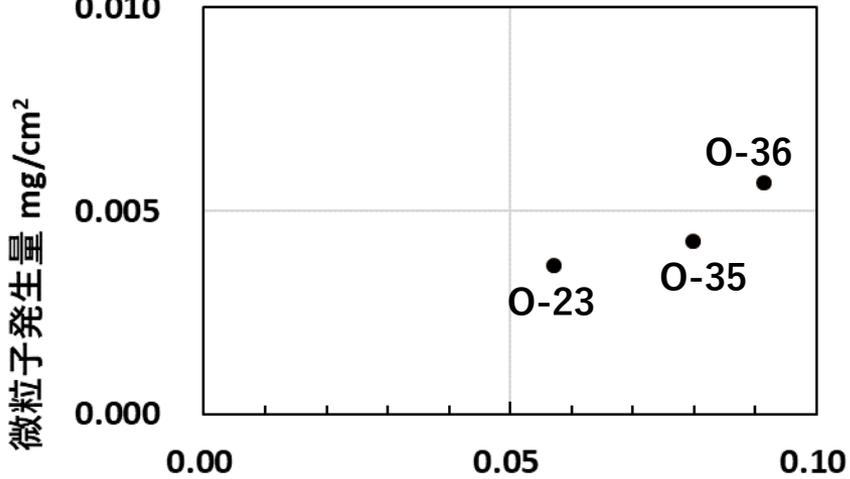
5. 実施内容

(1)②微粒子化を発生する環境条件範囲の検討 ③長期予測性を向上させるための加速試験の実施

▶ FeO+(U,Zr)O₂の気中試験（長期挙動）

✓ 得られたデータから長期挙動を推定

各温度の試験データを
横軸を経過年数として表記



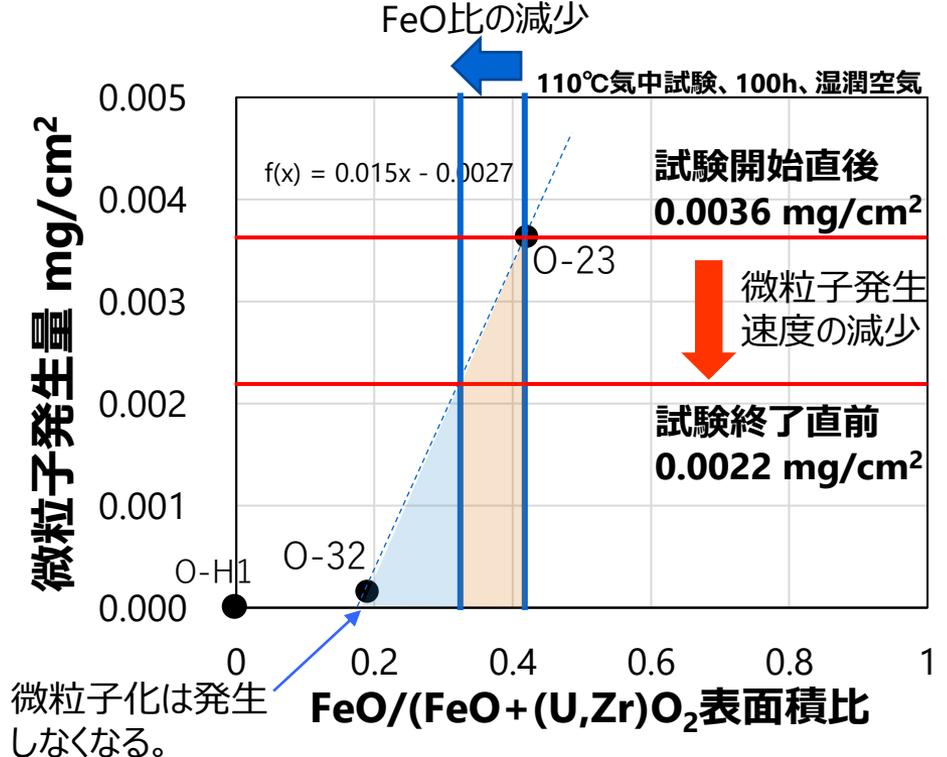
実温度に換算した経過時間 year

O-36試験	FeO表面積比 (=FeO/(FeO+(U,Zr)O ₂))
試験前試料	0.42 (0.40~0.44)
試験後試料	0.33 (0.31~0.35)

() 内は読取り誤差範囲を示す

100h加速試験であるO-36試験においても
表層のFeO表面積比の減少が見られた。

O-36試験の微粒子発生の上限值の検討



⇒ O-36試験の微粒子発生の上限值0.0093mg/cm²を推定

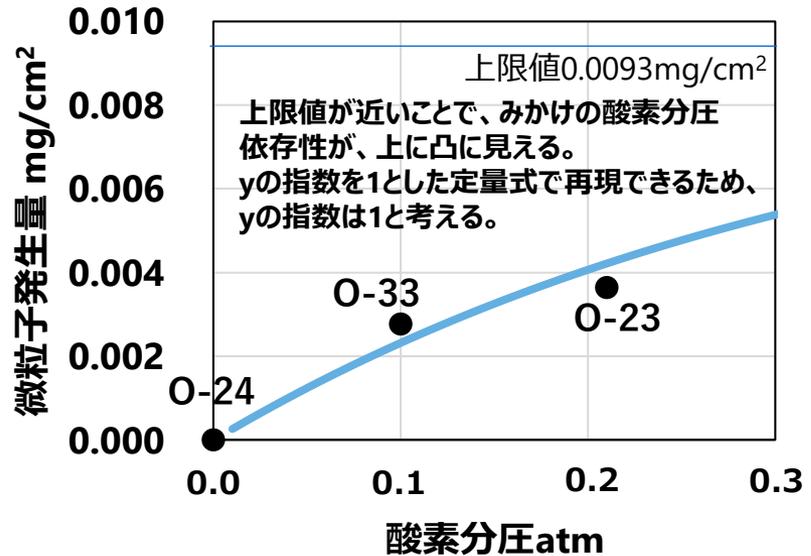
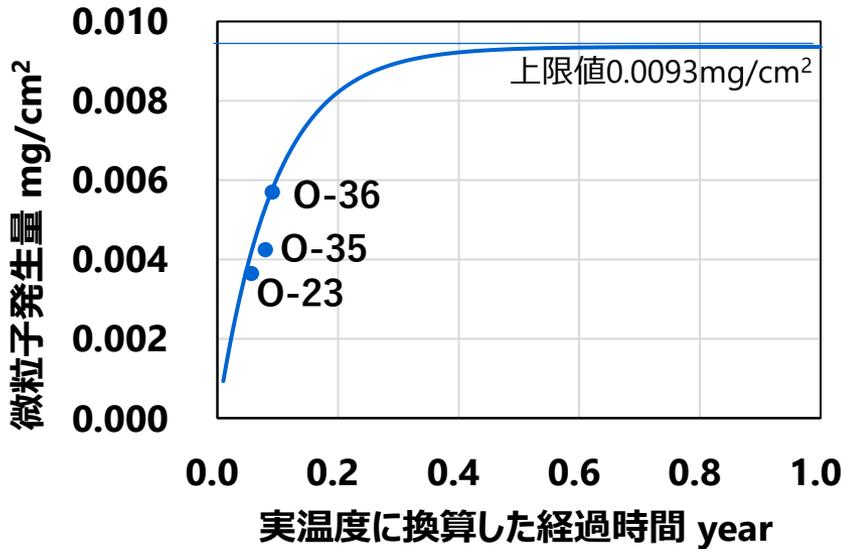
5. 実施内容

(1)②微粒子化を発生する環境条件範囲の検討 ③長期予測性を向上させるための加速試験の実施

▶ FeO+(U,Zr)O₂の気中試験（長期挙動）

✓ 得られたデータから長期挙動を推定

- ✓ 微粒子発生量Rの長期挙動には、上限値が存在し、 $x=0.42$ 、 $y=0.21$ 、 $Z = \infty$ のとき、 0.0093mg/cm^2 。上限値の因子には組成依存式($0.015x - 0.0027$)が存在するため、上限値は、 $2.6 \times (0.015x - 0.0027)$ と表される。
- ✓ 経過時間 z と酸素分圧 y の積に応じて上限値に近づくため、式の形は、
 $R(x,y,z)=2.6 \times (0.015x-0.0027) \times (1-\exp(-byz))$ (b は定数) と考えられる。
- ✓ フィッティングを行って b を定め、 $R(x,y,z)=2.6 \times (0.015x-0.0027) \times (1-\exp(-50yz))$



- ✓ Zr(O)+(U,Zr)O₂からの微粒子発生挙動と比較すると、活性化エネルギーが小さく変化が早い、数カ月で表層のFeO比率が下がって上限値に達する。上限値もZr(O)+(U,Zr)O₂より低い、短期的には微粒子を多く発生する。

従属性を考慮したFeO+(U,Zr)O₂からの微粒子発生量 $R(x,y,z)=2.6 * (0.015x-0.0027) * (1-\exp(-50yz))$

x はFeO/(FeO+(U,Zr)O₂)表面積比、 y は酸素分圧(atm)、 z は経過時間(年)
 適用範囲、 $0.18 \leq x \leq 0.42$ (確認範囲)、 $0 \leq y \leq 0.21$ 、 $0 \leq z \leq 0.091$ (確認範囲)

5. 実施内容

(1) 微粒子化現象が生じる境界領域を見出し、長期予測性を向上させるための試験方法の立案と実施

◆ 検討対象項目

試験材質	試験方法	① 材料条件の検討	② 環境条件の検討	③ 長期予測性向上の加速試験
Zr(O)+(U,Zr)O ₂	気中試験	<ul style="list-style-type: none"> ・Zr(O)/(U,Zr)O₂比を変数とした試験データ取得済【●】 	<ul style="list-style-type: none"> ・酸素分圧依存性データを取得済【●】 ・空気湿潤影響データを取得【○】 	<ul style="list-style-type: none"> ・温度依存性データ取得【前事業で完了】 ・長時間試験データ取得【○】
FeO+(U,Zr)O ₂ *	気中試験	<ul style="list-style-type: none"> ・FeO/(U,Zr)O₂比を変数とした試験データ取得済【◎】 	<ul style="list-style-type: none"> ・酸素分圧依存性データを取得【○】 	<ul style="list-style-type: none"> ・温度依存性データを取得【○】
(U,Zr)O ₂ 介在ガラス状燃料デブリ	水中試験	<ul style="list-style-type: none"> ・(U,Zr)O₂/SiO₂比を変数とした試験データ取得済【◎】 	<ul style="list-style-type: none"> ・平衡酸素分圧依存性データを取得済【●】 ・ホウ酸影響試験済【●】 ・水流付与試験済【◎】 	<ul style="list-style-type: none"> ・温度依存性データ取得【前事業で完了】 ・長時間試験データ取得【○】
FeO+(U,Zr)O ₂ 介在ガラス状燃料デブリ	水中試験	<ul style="list-style-type: none"> ・(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの結果から推定【○】 	<ul style="list-style-type: none"> ・水中試験後乾燥の影響試験済み【●】 ・平衡酸素分圧依存性データを取得済み【◎】 	<ul style="list-style-type: none"> ・(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの結果から推定【○】
	気中試験*	<ul style="list-style-type: none"> ・FeO+(U,Zr)O₂の結果と比較して推定【○】 	<ul style="list-style-type: none"> ・酸素分圧依存性データを取得【○】 	<ul style="list-style-type: none"> ・FeO+(U,Zr)O₂の結果と比較して推定【○】

*TENEXの前事業報告を受けて追加した試験対象

【●】2021年度完了、【◎】2022年度上期完了、【○】2022年度下期完了

5. 実施内容

(1)①②③燃料デブリの組成や環境条件範囲、長期挙動の検討

▶ FeO+(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの気中試験

TENEXの試験結果を参考に2021年度に初めて気中での微粒子化の発生を見出した組成

✓ 酸素分圧依存性データを取得する。他項目の微粒子発生挙動との類似性を考察して推定を行う。

Fe/FeO含有模擬燃料デブリ(空気雰囲気、110°C加速試験)微粒子発生挙動

模擬燃料デブリの材質	微粒子発生量 mg/cm ²	発生した微粒子に含まれる 主な金属核種	みかけの活性化エネルギー
(U,Zr)O ₂ 介在ガラス状模擬燃料デブリ	観測されず	-	-
介在物の無いガラス状模擬燃料デブリ	観測されず	-	-
Fe 介在ガラス状模擬燃料デブリ	0.0091	Fe+ガラス質	24 kJ/mol
FeO 介在ガラス状模擬燃料デブリ	0.017	Fe	36 kJ/mol
FeO +(U,Zr)O ₂ 模擬燃料デブリ	0.0036	Fe+(U,Zr)O₂	29 kJ/mol
FeO +(U,Zr)O ₂ 介在ガラス状模擬燃料デブリ	0.0075	Fe+(U,Zr)O₂+ガラス質	-

- ✓ 気中での微粒子発生の要因は、(U,Zr)O₂やガラス質ではなく、Fe/FeOである。
- ✓ Fe/FeOが存在するガラス質及び非ガラス質模擬燃料デブリからは、マトリックスの微粒子がそのまま発生する。
- ✓ 同環境での微粒子発生量は同じオーダーであり、みかけの活性化エネルギーも近いので、Fe/FeOが介在する模擬燃料デブリからは、同じメカニズムで微粒子が発生している可能性が高い。
- ✓ FeO+(U,Zr)O₂では短期間で表層のFeOが枯渇する(p.43)と考えられ、他のFe/FeOが介在する模擬燃料デブリでも同様の現象が発生する可能性が考えられる。



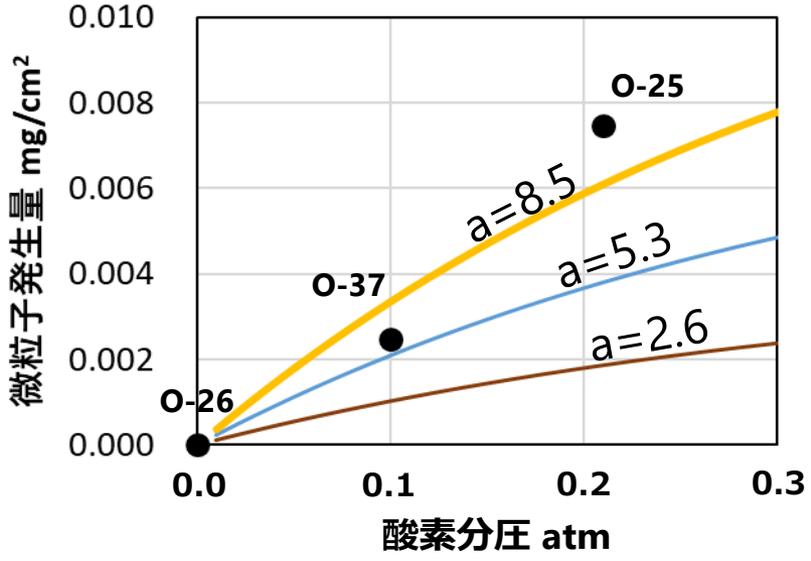
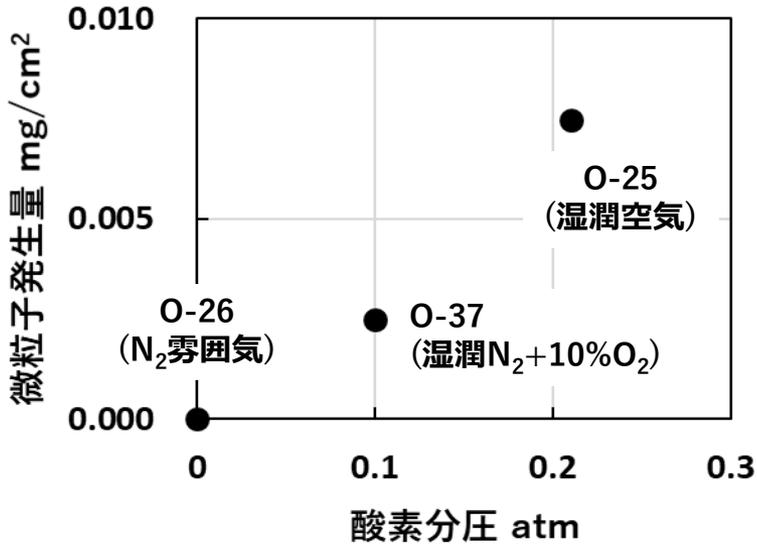
FeO+(U,Zr)O₂の気中試験で得られた微粒子発生量の式が、FeO+(U,Zr)O₂のガラス状燃料デブリにおいても基本的にそのまま適用できる可能性がある。

5. 実施内容

(1)①②③燃料デブリの組成や環境条件範囲、長期挙動の検討

▶ FeO+(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの気中試験

✓ 酸素分圧依存性データを取得する。他項目の微粒子発生挙動との類似性を考察して推定を行う。



- ✓ 系統的に得た酸素分圧依存性データに対し、FeO+(U,Zr)O₂の気中試験で得られた微粒子発生量の式をそのまま当てはめた(a=2.6)ところ過小評価となった。これは、亀裂を進展させやすいガラス質を含むことで、FeO部分に生じる亀裂が同じであっても、微粒子発生量が増加するためであると考えられ、これによって上限値が増加したためであると考えられる。
- ✓ 上限値をパラメータとしてフィッティングしたところ、a=8.5であれば実験値の誤差範囲内で一致することがわかった。
- ✓ 上限値補正の定量式については、まず、上限値は初期の微粒子発生量の比に比例する(a=5.3)と考え、さらに、過小評価している分を、微粒子発生量の組成依存式のしきい値の低下と考えて、組成依存式0.044 x -0.0052を推定した。また、上述のa=8.5に相当する上限値となるように係数1.8を算出して、以下の定量式を推定した。

FeO+(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリからの微粒子発生量 **$R(x,y,z) = 1.8 \cdot (0.044x - 0.0052) \cdot (1 - \exp(-50yz))$**

xはFeO/(FeO+(U,Zr)O₂+ガラス質)表面積比、yは酸素分圧(atm)、zは経過時間(年)
 適用範囲はFeO+(U,Zr)O₂と同様と考えて、0.15 ≤ x ≤ 0.42(確認範囲)、0 ≤ y ≤ 0.21、0 ≤ z ≤ 0.091(確認範囲)

5. 実施内容

(1) 微粒子化現象が生じる境界領域を見出し、長期予測性を向上させるための試験方法の立案と実施

▶ 気中微粒子化挙動のまとめ

Zr(O)+(U,Zr)O₂からの微粒子発生量 $R(x,y,z)=19.4*(0.0076x-0.0007)*(1-\exp(-0.56yz))$

xはZr(O)/(Zr(O)+(U,Zr)O₂)表面積比、yは酸素分圧(atm)、zは経過時間(年)
適用範囲、 $0 \leq x \leq 0.56$ (確認範囲)、 $0 \leq y \leq 0.21$ 、 $0 \leq z \leq 34$ (確認範囲)

FeO+(U,Zr)O₂からの微粒子発生量 $R(x,y,z)=2.6*(0.015x-0.0027)*(1-\exp(-50yz))$

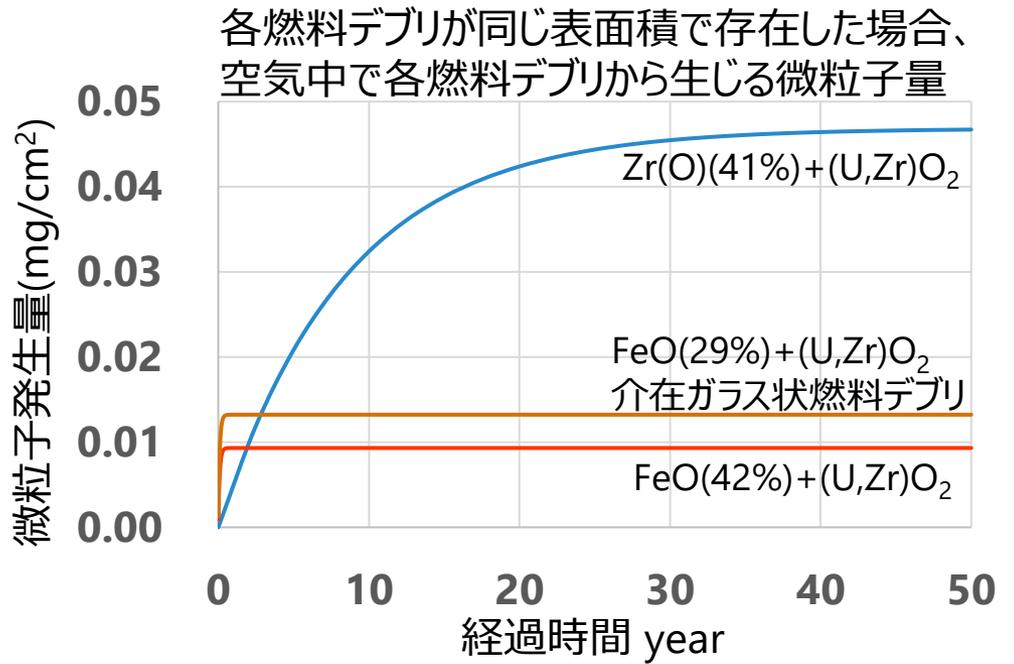
xはFeO/(FeO+(U,Zr)O₂)表面積比、yは酸素分圧(atm)、zは経過時間(年)
適用範囲、 $0.18 \leq x \leq 0.42$ (確認範囲)、 $0 \leq y \leq 0.21$ 、 $0 \leq z \leq 0.091$ (確認範囲)

FeO+(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリからの微粒子発生量 $R(x,y,z)=1.8*(0.044x-0.0052)*(1-\exp(-50yz))$

xはFeO/(FeO+(U,Zr)O₂+ガラス質)表面積比、yは酸素分圧(atm)、zは経過時間(年)
適用範囲はFeO+(U,Zr)O₂と同様と考えて、 $0.15 \leq x \leq 0.42$ (確認範囲)、 $0 \leq y \leq 0.21$ 、 $0 \leq z \leq 0.091$ (確認範囲)

- ✓ Zr(O)やFeOを含む燃料デブリからは、表層成分全体の微粒子化を生じる。
- ✓ 短期的には微粒子を継続的に発生するが、年単位では、表層におけるZr(O)やFeO成分が減少し、やがて微粒子発生速度はゼロに近づく。
- ✓ FeOを含む燃料デブリからの微粒子発生の活性化エネルギーは小さく、数カ月で継続的な微粒子発生は低下するが、短期的な微粒子発生量は多い。
- ✓ Zr(O)を含む燃料デブリからの微粒子発生は20年後も継続しており、最終的な微粒子発生量は比較的多くなる。

以上のように酸素を含む気中で微粒子を発生する3種類の燃料デブリについて、微粒子発生量予測の定式化を行った。



5. 実施内容

(1) 微粒子化現象が生じる境界領域を見出し、長期予測性を向上させるための試験方法の立案と実施

◆ 検討対象項目

試験材質	試験方法	① 材料条件の検討	② 環境条件の検討	③ 長期予測性向上の加速試験
Zr(O) ₂ +(U,Zr)O ₂	気中試験	<ul style="list-style-type: none"> ・Zr(O)₂/(U,Zr)O₂比を変数とした試験データ取得済【●】 	<ul style="list-style-type: none"> ・酸素分圧依存性データを取得済【●】 ・空気湿潤影響データを取得【○】 	<ul style="list-style-type: none"> ・温度依存性データ取得【前事業で完了】 ・長時間試験データ取得【○】
FeO+(U,Zr)O ₂ *	気中試験	<ul style="list-style-type: none"> ・FeO/(U,Zr)O₂比を変数とした試験データ取得済【◎】 	<ul style="list-style-type: none"> ・酸素分圧依存性データを取得【○】 	<ul style="list-style-type: none"> ・温度依存性データを取得【○】
(U,Zr)O ₂ 介在ガラス状燃料デブリ	水中試験	<ul style="list-style-type: none"> ・(U,Zr)O₂/SiO₂比を変数とした試験データ取得済【◎】 	<ul style="list-style-type: none"> ・平衡酸素分圧依存性データを取得済【●】 ・ホウ酸影響試験済【●】 ・水流付与試験済【◎】 	<ul style="list-style-type: none"> ・温度依存性データ取得【前事業で完了】 ・長時間試験データ取得【○】
FeO+(U,Zr)O ₂ 介在ガラス状燃料デブリ	水中試験	<ul style="list-style-type: none"> ・(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの結果から推定【○】 	<ul style="list-style-type: none"> ・水中試験後乾燥の影響試験済み【●】 ・平衡酸素分圧依存性データを取得済み【◎】 	<ul style="list-style-type: none"> ・(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの結果から推定【○】
	気中試験*	<ul style="list-style-type: none"> ・FeO+(U,Zr)O₂の結果と比較して推定【○】 	<ul style="list-style-type: none"> ・酸素分圧依存性データを取得【○】 	<ul style="list-style-type: none"> ・FeO+(U,Zr)O₂の結果と比較して推定【○】

【●】2021年度完了、【◎】2022年度上期完了、【○】2022年度下期完了

5. 実施内容

(1) ①燃料デブリの組成や相状態の範囲の検討

▶ (U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの水中経年変化（材料条件）

✓ (U,Zr)O₂とガラス質の比率を系統的に変化させて、微粒子化範囲を検討

(U,Zr)O₂介在ガラス状模擬燃料デブリの作製

- (1) (U,Zr)O₂粉末作製 UO₂とZrO₂混合粉末プレス体(U:Zr=約95:5)を2200℃焼成後、粉末化
- (2) 粉末混合 Fe₃O₄, ZrO₂, Al₂O₃, UO₂, CaCO₃, SiO₂, Na₂CO₃、及びc-(U,Zr)O₂粉末を下表のとおり混合
ただし、種類912については、c-(U,Zr)O₂粉末の代わりにUO₂粉末を使用
- (3) ケラマックス炉焼成 1600℃/20min(昇降温速度約300℃/h)、Ar+1%H₂+H₂O(約30℃水飽和)、Ptるつぼ

試験ID	試料種類	混合した粉末 g (仕込み量、合計10gに規格化)								介在物比率 (計測値)
		(U,Zr)O ₂	UO ₂	ZrO ₂	Fe ₃ O ₄	Al ₂ O ₃	SiO ₂	CaO	Na ₂ CO ₃	
L-21	種類911	1.64	0.19	0.09	0.21	0.57	6.51	0.43	0.37	6.0%
前事業L-3-2	種類91	2.82	0.16	0.07	0.18	0.49	5.59	0.37	0.32	12.4%
前事業L-4	種類92	6.12	0.09	0.04	0.10	0.26	3.04	0.20	0.17	25.6%
L-30	種類913	7.58	0.05	0.02	0.06	0.16	1.88	0.13	0.11	45.8%
L-22	種類912	7.58(注)	0.05	0.02	0.06	0.16	1.88	0.13	0.11	47.8%

(注)種類912はUO₂を使用

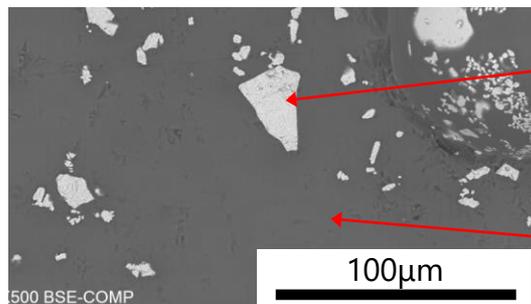
介在物を形成するための粉末組成
(ガラス質からの析出限度を上回る組成)

ガラス質を形成するための粉末組成
(ガラス質から析出を生じない範囲の組成)

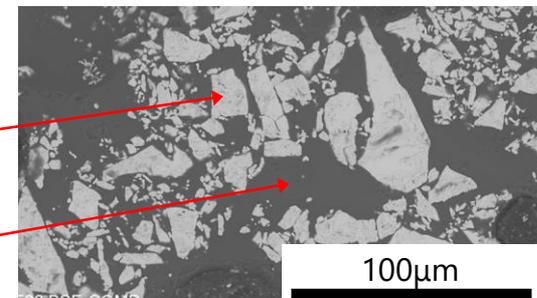
$$\text{介在物比率} = \frac{\text{介在物}}{\text{介在物} + \text{ガラス質}}$$

介在物比率の計測

- ✓ SEM像（100~500倍）の2値化処理により介在物比を算出
- ✓ 前事業で取得したSEM画像についても同様の方法で再評価



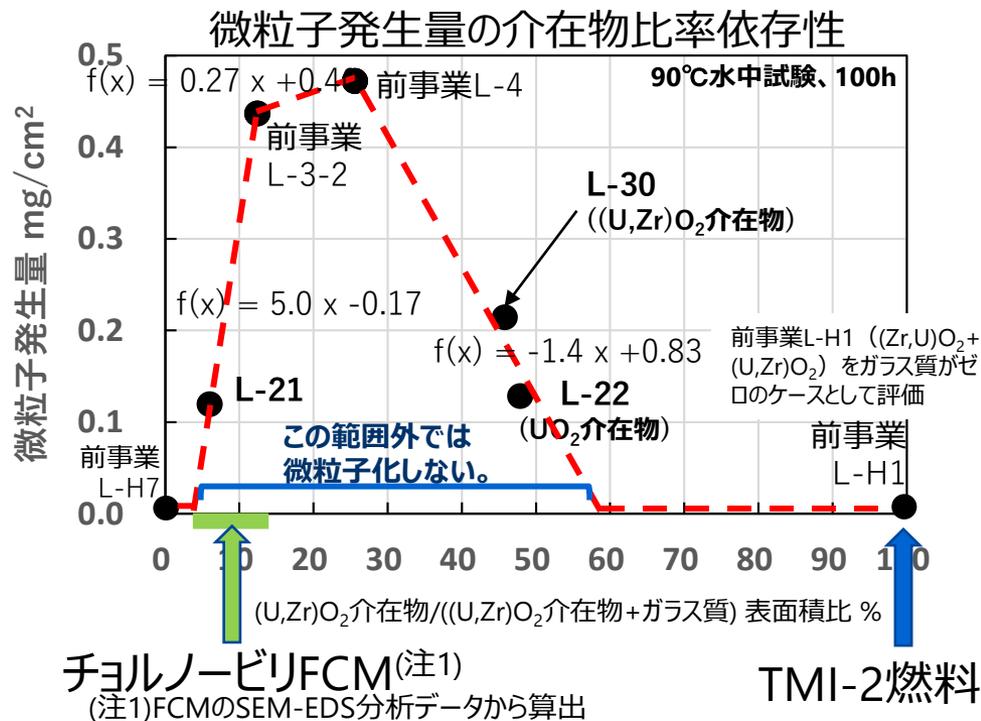
(U,Zr)O₂ 介在物
UO₂ 介在物
ガラス質



5. 実施内容

(1) ①燃料デブリの組成や相状態の範囲の検討

▶ (U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの水中経年変化 (材料条件)



- ✓ 介在物比率が大きい場合も小さい場合も、微粒子発生量の閾値が存在した。前事業では、(U,Zr)O₂部分の酸化による亀裂生成がガラス部分に進展することが微粒子化の要因で、(U,Zr)O₂介在物とガラス質が両方共存する場合に微粒子化が発生すると考察しており、整合する。
- ✓ (U,Zr)O₂介在物でもUO₂介在物でも同様の微粒子発生効果があることがわかった。

- ✓ 微粒子発生量の燃料デブリ組成依存性fは、本来は実験値をなめらかに結んで設定するべきであるが、ここでは、各しきい値に向け減少する2区間と、依存性の小さい頂上付近の区間の合計3区間をそれぞれ直線に近似して設定した。fは、xを(U,Zr)O₂介在物/(介在物+ガラス質)表面積比として、
 $f(x) = 5.0x - 0.17$ ($0.034 \leq x \leq 0.12$)、 $f(x) = 0$ ($x \leq 0.034$)
 $f(x) = 0.27x + 0.40$ ($0.12 \leq x \leq 0.26$)
 $f(x) = -1.4x + 0.83$ ($0.26 \leq x \leq 0.59$)、 $f(x) = 0$ ($x \geq 0.59$)
 という定量式で表される。ただし、適用範囲は、 $0 \leq x \leq 1$

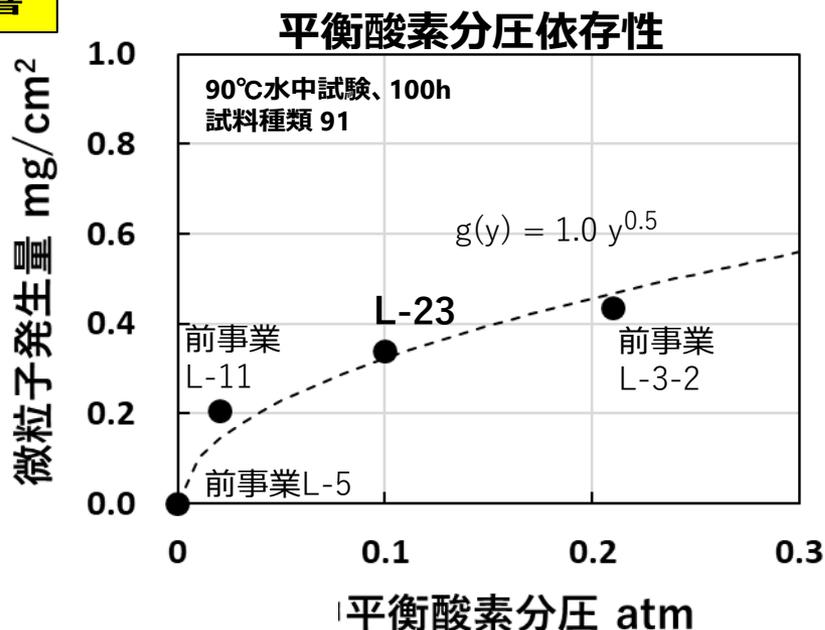
5. 実施内容

(1)①燃料デブリの組成や相状態の範囲の検討

▶ (U,Zr)O₂ 介在ガラス状燃料デブリの水中経年変化（環境条件）

- ✓ 平衡酸素分圧、高濃度イオン、乾燥時腐食層脱離、わずかな水流による影響を検討する。

平衡酸素分圧の影響



- ✓ 微粒子発生量の燃料デブリ組成依存性 g は、 y =平衡酸素分圧(atm)として、
 $g(y) = 1.0y^{0.5}$ ($0 \leq y \leq 0.21$)
という定量式で表される。適用範囲は、 $0 \leq y \leq 0.21$

5. 実施内容

(1)②微粒子化を発生する環境条件範囲の検討

▶ (U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの水中経年変化（環境条件）

前事業では、(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの水中試験において、残留硝酸によるpH変化では微粒子発生量は変化しなかった。pH以外にも陰イオンによる微粒子発生量の増加が考えられた。

ホウ酸イオンの影響確認

L-26試験：
✓ 1F炉内の緊急時の臨界防止系で注入される6000ppm-Bの五ホウ酸ナトリウムを想定し、中性領域での高濃度のホウ酸イオンの影響を確認。

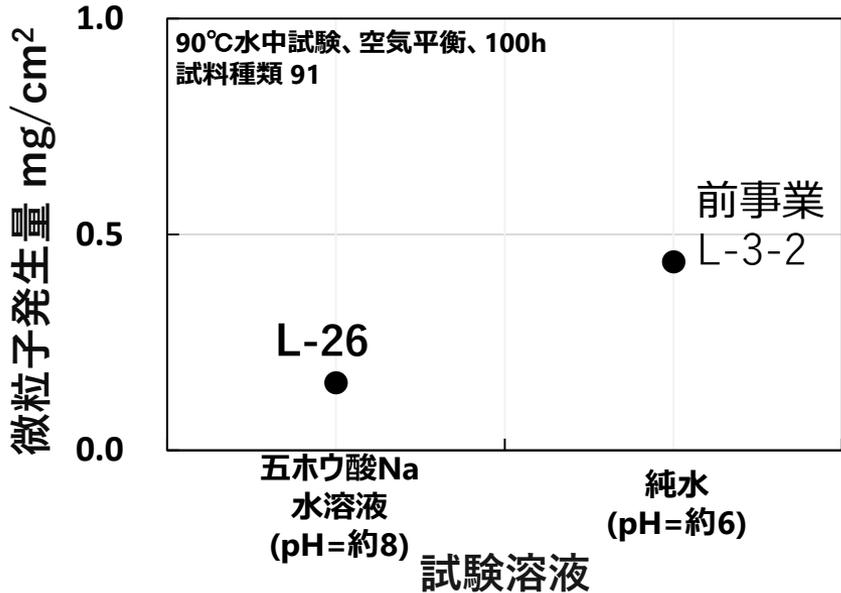


✓ ホウ酸イオンの追加によって、微粒子発生量が増加は見られなかった。
⇒ **ホウ酸濃度に対する依存性は無い**と考える。

乾燥時腐食層脱離の影響評価

✓ 後述するように、(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリからの微粒子発生メカニズムを内包すると見られるFeO+(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリにて、乾燥時の腐食層脱離の影響は小さいことがわかっており、**乾燥時の腐食層脱離の影響は無い**と考えられる。

微粒子発生量への水質の影響



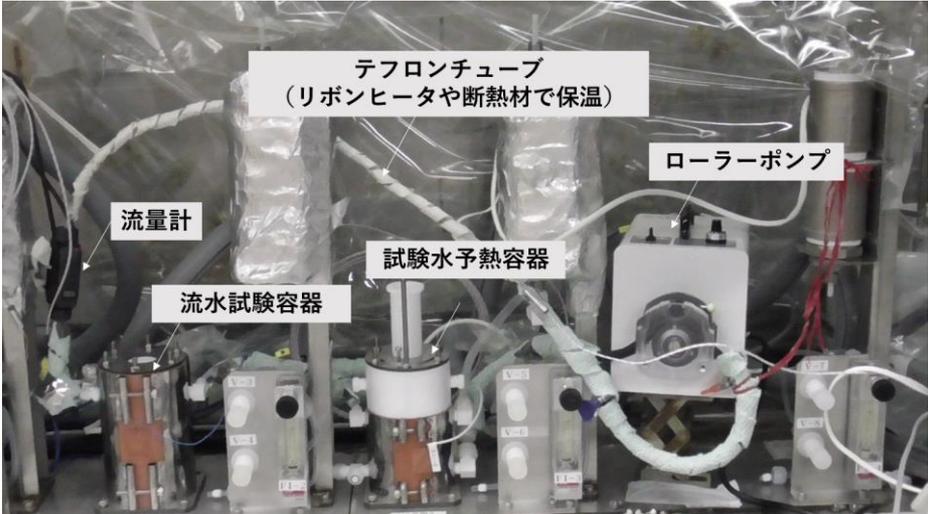
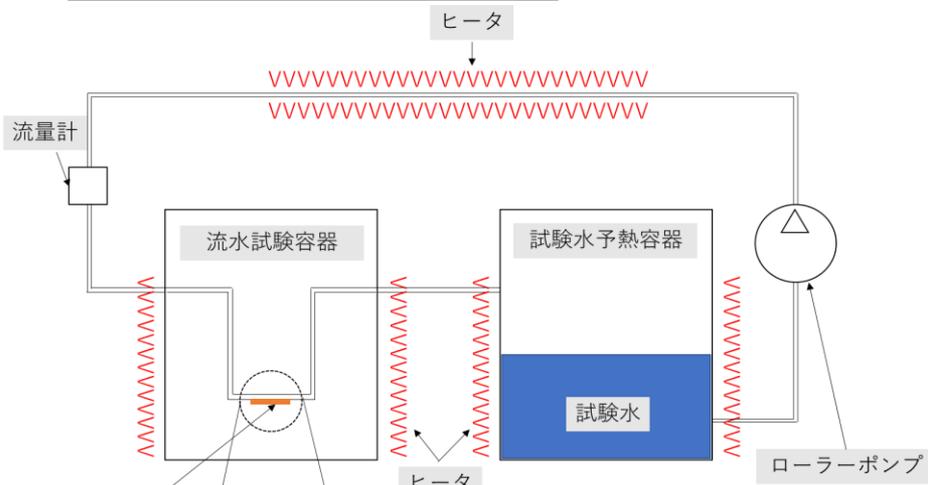
5. 実施内容

(1)②微粒子化を発生する環境条件範囲の検討

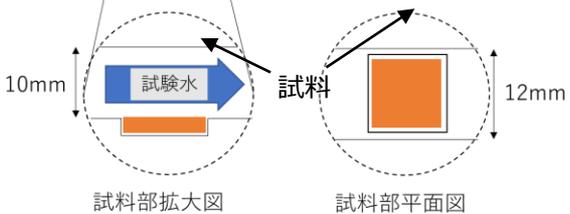
▶ (U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの水中経年変化（環境条件）

前事業では、(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの水中試験において、水交換回数に依存して微粒子発生量が変化した。試験体系による試料交換作業に応じた変化である可能性のほか、水交換時のわずかな水流に影響された可能性が考えられた。

わずかな水流の影響確認



流水付与装置の外観



流水付与装置の模式図

- ◆装置性能
 - 試験温度：室温～最大80℃
 - 試料部流量断面積：1.2 cm²
 - 流量：最大 1mL/s (0.8 cm/s)
 - 連続運転時間：100時間

溶液加熱用容器にて加熱した試験水をローラーポンプで循環させ、試料表面に流水を付与

5. 実施内容

(1)②微粒子化を発生する環境条件範囲の検討

▶ (U,Zr)O₂ 介在ガラス状燃料デブリの水中経年変化（環境条件）

わずかな水流の影響確認

L-33試験：
わずかな水流に対する影響試験として
0.8cm/s、80℃×100時間
での試験を実施した。



✓ わずかな水流の追加によって、微粒子発生量の変化は発生しなかった。
⇒**わずかな水流に対する依存性は無い**と考えられる。

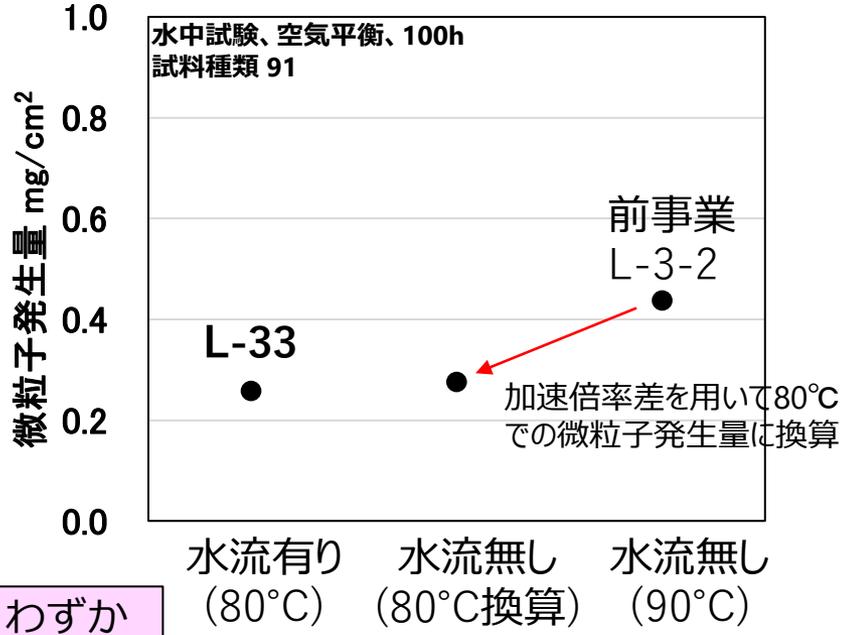
前事業で水交換回数に依存して微粒子発生量が増加した理由は、水交換時のわずかな水流の影響ではなく、試料交換作業による変化であると考えられ、試験体系に依存した一般的ではない変化であると考えられる。

環境条件範囲検討のまとめ

- ✓ 平衡酸素分圧、高濃度イオン、乾燥時腐食層脱離、わずかな水流による影響のうち、依存性を示したものは、平衡酸素分圧のみ。
- ✓ 平衡酸素分圧依存式が、環境条件の関数式となる。

発生した微粒子の回収は、試験に使用した水の回収、及び流路の洗浄水をろ過することで行った。乾燥後のろ紙の重量変化を測定するとともに、ろ紙から一部回収した微粒子のSEM-EDS観察により、試料から発生した微粒子と試験系からのわずかなコンタミ(密度既知のチューブポンプのチューブ劣化物)の比率を観察することで、微粒子発生量を算出した。
EDS : Energy Dispersive X-ray Spectroscopy

微粒子発生量への水質の影響



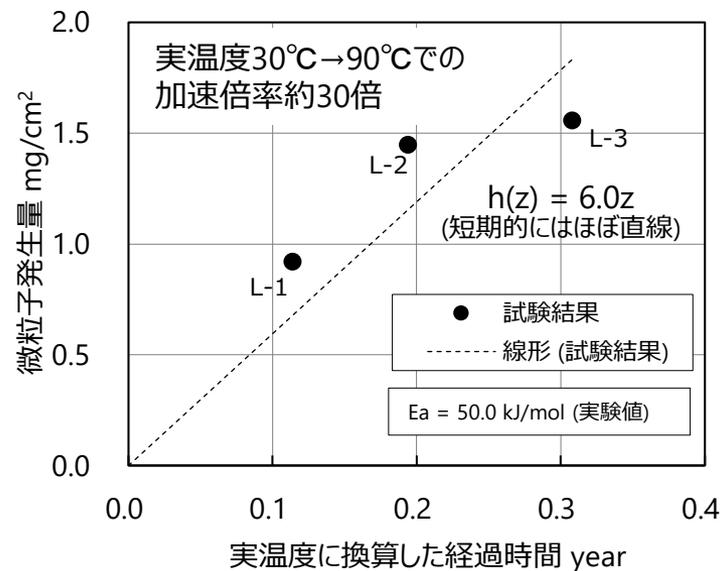
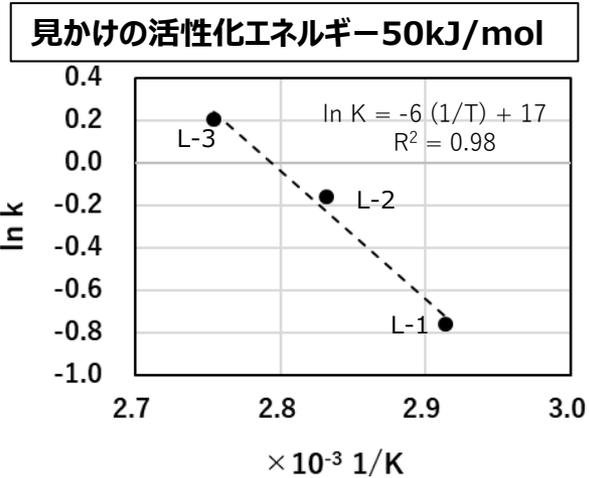
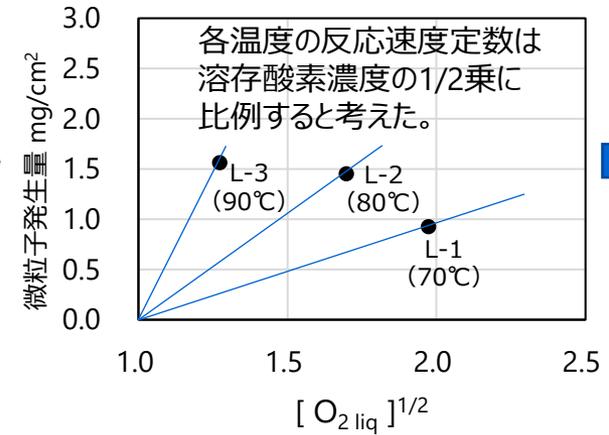
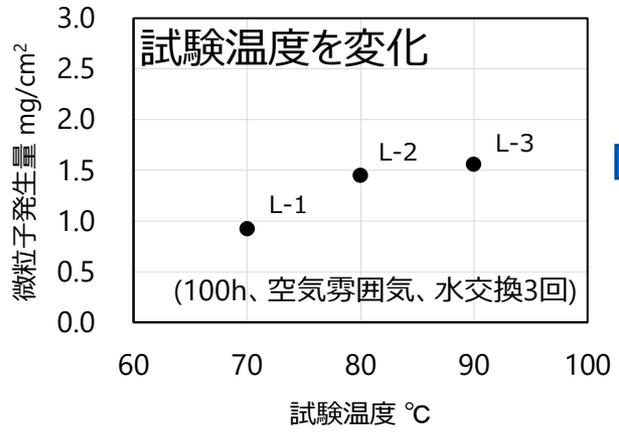
5. 実施内容

(1)③長期予測性を向上させるための加速試験の実施

▶ (U,Zr)O₂ 介在ガラス状燃料デブリの水中経年変化（長期挙動）

✓ 加速試験をなるべく長時間実施して長期挙動を検討

加速倍率の設定（前事業にて実施済）



平衡酸素分圧試験において、平衡酸素分圧の1/2乗に依存したため、**微粒子発生量 = 反応速度定数k × (溶存酸素濃度)^{1/2}**と考えた。

UO₂固体酸化の活性化エネルギー(UO₂気相中酸化: 140 kJ/mol)より小さいが、表層酸化の活性化エネルギーは数十kJ/molとの報告※もあり、みかけの活性化エネルギーが減少するものと考えられる。ここでは、**微粒子発生**の活性化エネルギーEaを50kJ/molとした。

※G. Leinders, et. al., Inor. Chem, 2018, 57, 4196-4204.

加速試験の加速倍率は $\exp[(Ea/R)(1/T - 1/T')]$ にて定めた。水中での燃料デブリの温度を30°Cと考えた場合、90°Cでの加速試験の加速倍率は約30倍となる。

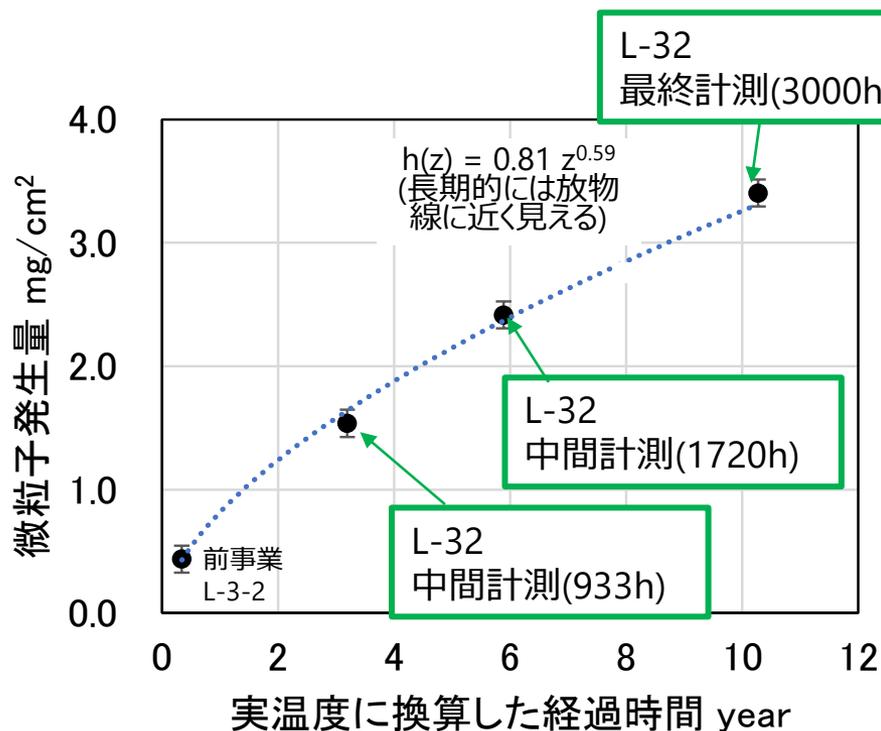
5. 実施内容

(1) ③長期予測性を向上させるための加速試験の実施

▶ (U,Zr)O₂ 介在ガラス状燃料デブリの水中経年変化（長期挙動）

L-32試験：水中の燃料デブリの実温度を30℃と考え、空気平衡水中90℃(加速倍率約30倍)にて、最大3000時間の加速試験(実時間換算最大10年)を実施。

- ✓ L-32試験では、933及び1720時間経過時に、一旦、微粒子を回収して、微粒子発生量を計測。
- ✓ 水交換を行わない方法で実施。(微粒子回収後は同じ溶液に戻して試験を継続。)



➤ 本事業で得られたデータのうち、誤差が最も大きいデータは長期試験データとなるため、縦軸誤差と横軸誤差を評価した。

➤ このうち縦軸誤差の支配的要因は、ろ紙に捕獲された微粒子重量の天秤の誤差であるため、その誤差を図示した。

➤ 経過時間が増すと微粒子発生速度の低下が見られた。指数関数にフィッティングしたところ、経過時間の0.59乗に比例した。

微粒子発生量の経過時間依存性 h は、 z を経過時間(年)として、

$$h(z) = 0.81z^{0.59}$$

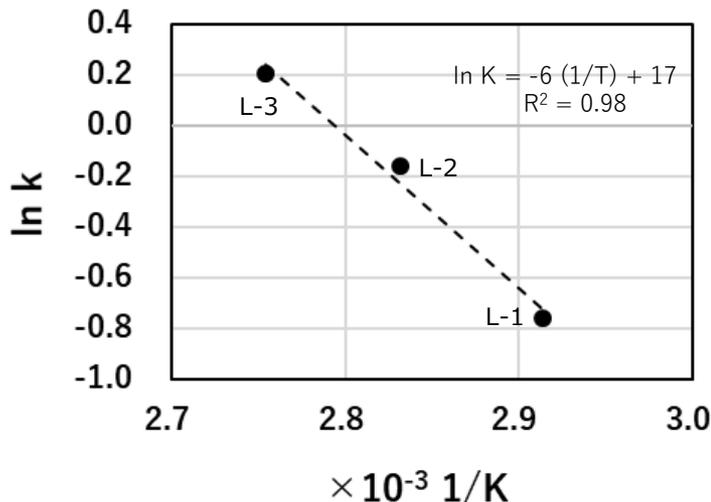
という定量式で表される。適用範囲は、 $0 \leq z \leq 10$ (確認範囲)

5. 実施内容

(1)③長期予測性を向上させるための加速試験の実施

▶ (U,Zr)O₂ 介在ガラス状燃料デブリの水中経年変化（長期挙動）

- ▶ 本事業で得られたデータのうち、誤差が最も大きいデータは長期試験データとなる。
- ▶ **横軸誤差**の支配的要因は、活性化エネルギーへのフィッティング誤差であるため、その誤差を検討した。



アレニウスプロットの傾きの標準偏差±σを以下によって計算した。

$$\sigma = \sqrt{(\Sigma (y - (\beta x + \alpha))^2 / \Sigma (x - \bar{x})^2)} \quad \text{ここで } \bar{x} \text{ は平均値}$$

その結果、活性化エネルギー $50 \pm 6 \text{ kJ/mol}$

加速倍率(30°C→90°C) $30 (20\sim40) \text{ 倍}$

長期試験予測年数 $10 (7\sim14) \text{ 年}$

となり、 $h(z) = 0.81z^{0.59}$ に従うとして**予測年数誤差を縦軸に換算**すると、

10年後の縦軸誤差 $3.2 (2.6\sim3.8)$

となる。

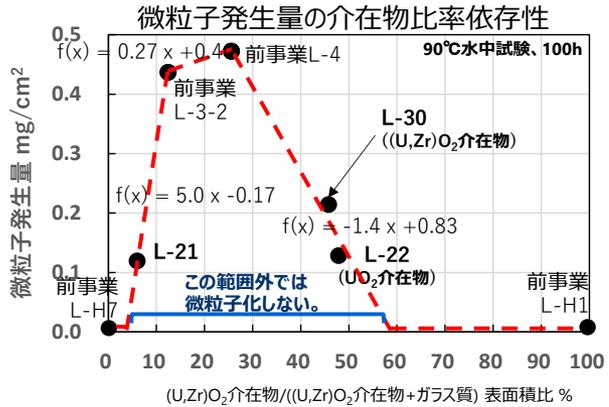
括弧内は誤差範囲±σを示す

5. 実施内容

(1) ③長期予測性を向上させるための加速試験の実施

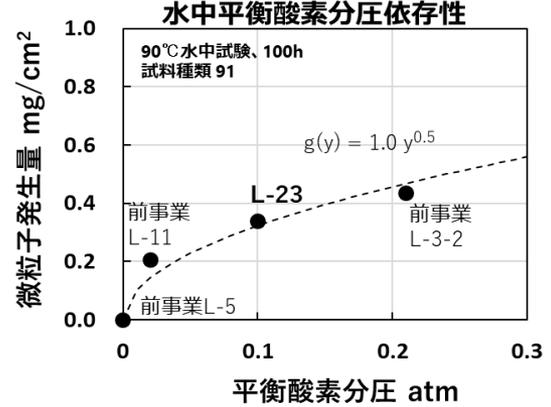
▶ (U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの水中経年変化の定式化

(U,Zr)O₂の介在ガラス燃料デブリは、気中での微粒子発生は無く、水中での微粒子発生は下記の定量化式に従って発生



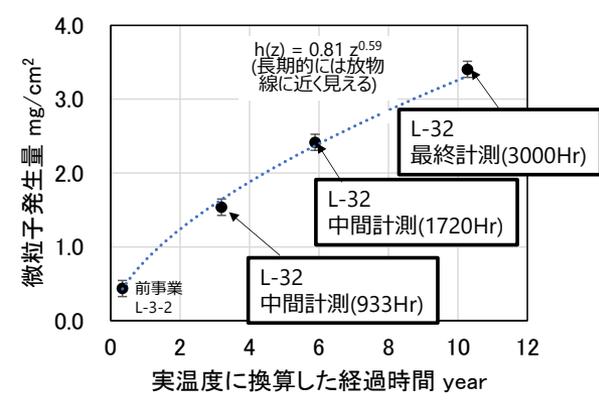
組成依存性の定量化式 f

閾値が2か所あり。
依存式は表中の赤点線



平衡酸素分圧依存性の定量化式 g

微粒子発生量の関数式は、 $g(y) = 1.0y^{0.5}$
y: 平衡酸素分圧(atm)



時間依存性の定量化式 h

z: 経過時間yearとして、
例えば $h(z) = 0.81z^{0.59}$

f、g、hが独立の場合、微粒子発生条件範囲と経年変化を示す定量化式Rは、 $f/A \times g/A \times h$ (Aは規格化定数)

hは、FeO表面積比の時間変化に応じて減少しているため、hは独立ではないが、ここでは初歩的な近似として、まず、それぞれが独立であるとして、微粒子発生条件範囲と経年変化を表す定式化を示す。

(U,Zr)O₂介在ガラスからの微粒子発生量 $R(x,y,z) = 5.24 \times f(x) \times 1.0 y^{0.5} \times 0.81 z^{0.59}$

$f(x) = 5.0x - 0.17$ ($0.034 \leq x \leq 0.12$ の時)、 $f(x) = 0$ ($x < 0.034$ の時)
 $f(x) = 0.27x + 0.40$ ($0.12 \leq x \leq 0.26$ の時)
 $f(x) = -1.4x + 0.83$ ($0.26 \leq x \leq 0.59$ の時)、 $f(x) = 0$ ($x > 0.59$ の時) (変数の従属性を考慮しない暫定式)

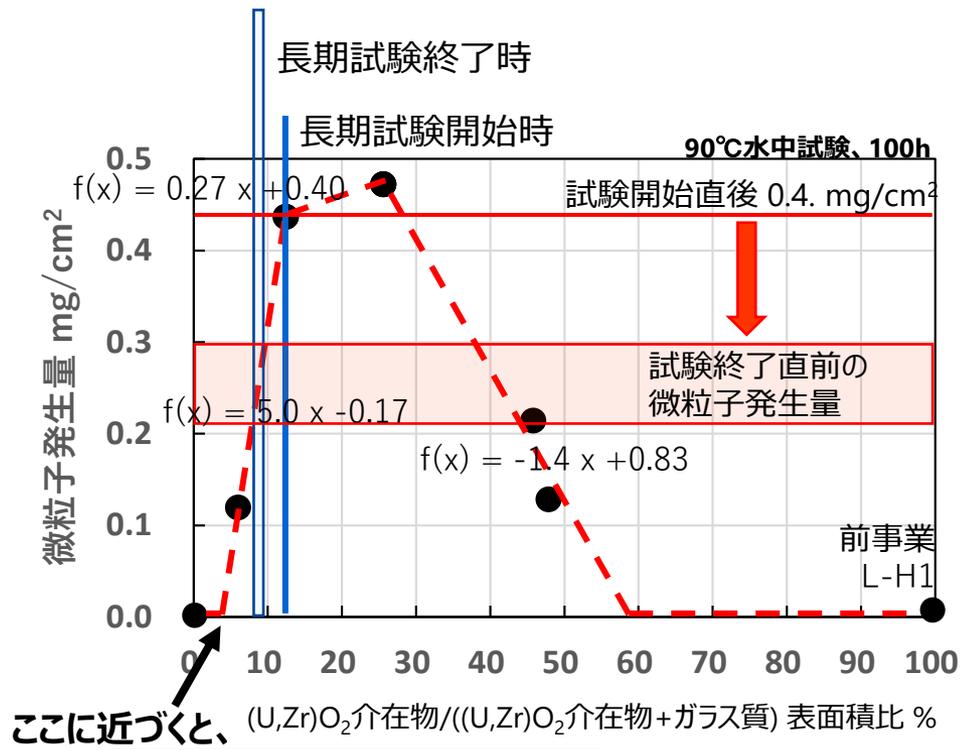
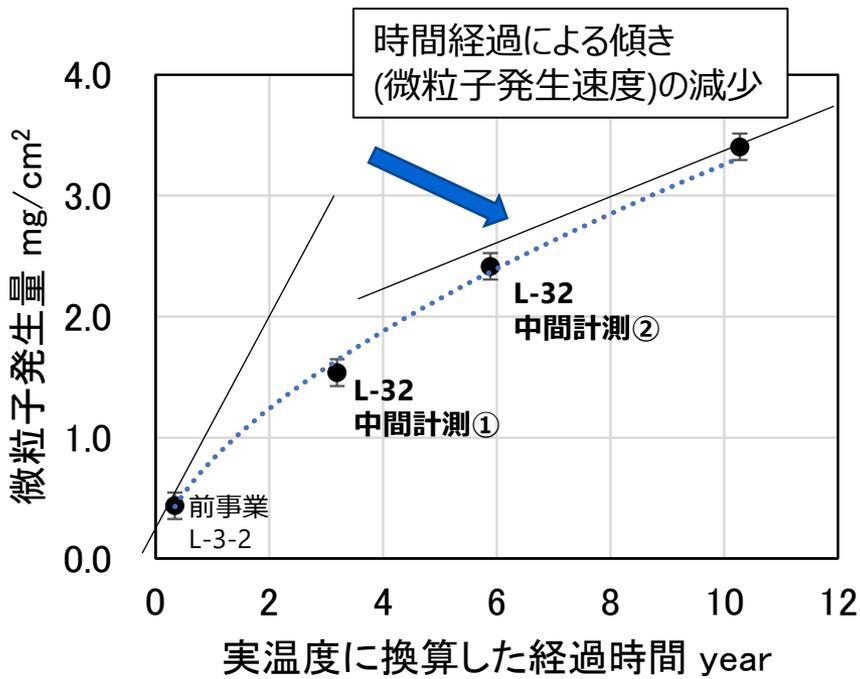
xは(U,Zr)O₂/(U,Zr)O₂+ガラス介在物) 比率 表面積比、yは平衡酸素分圧(atm)、Zは経過時間(年)
適用範囲、 $0 \leq x \leq 1$ 、 $0 \leq y \leq 0.21$ 、 $0 \leq z \leq 10$ (確認範囲)

5. 実施内容

(2) 1F燃料デブリにおける経年変化の推定

▶ (U,Zr)O₂ 介在ガラス状燃料デブリの水中経年変化 (長期挙動) 従属性の検討

L-32試験 (長期試験)	(U,Zr)O ₂ 表面積比 (=(U,Zr)O ₂ /((U,Zr)O ₂ +ガラス質))
試験前試料	0.12 (0.10~0.14)
試験後試料	0.090 (0.082~0.097)



- 微粒子は発生しなくなる。
- 表面積比変化も停止。

➤ このままL-32長期試験を継続すると、微粒子の発生速度はさらに低下し、傾きはゼロに近づき、微粒子発生量は一定値に近づくと見られる。

5. 実施内容

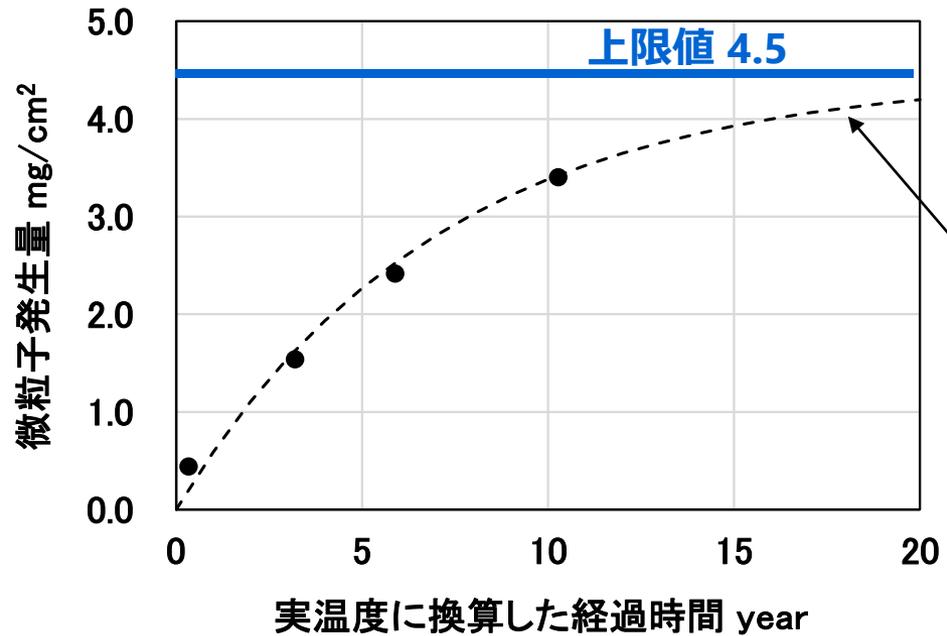
(2) 1F燃料デブリにおける経年変化の推定

▶ (U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの水中経年変化（長期挙動） 従属性の検討

➤ このまま長期試験を継続すると、微粒子の発生速度はさらに低下し、一定値に近づくと見られる。

$f(x)=5.0x-0.17$ ($0.034 \leq x \leq 0.12$)で表される区間（区間1）について考えると、上限値は $(5.0x - 0.17)$ を因子として持ち、EXP内のマイナス項として平衡酸素分圧 y の**0.5乗**と経過時間 z の積が関わるとして、Rの式の形は、 $A \times (5.0x - 0.17) \times (1 - \exp(-By^{0.5}z))$ (A, B は定数)。
下記のフィッティングを行って A, B を定め、微粒子発生量の定量式 $R(x, y, z)$ は、以下となる。

$R(x, y, z) = 10 \times (5.0x - 0.17) \times (1 - \exp(-0.31y^{0.5}z))$ 適用範囲 $0.034 \leq x \leq 0.12$
 x は(U,Zr)O₂/(U,Zr)O₂+ガラス介在物) 表面積比、 y は平衡酸素分圧(atm)、 z は経過時間(年)
 適用範囲、 $0 \leq y \leq 0.21$ 、 $0 \leq z \leq 10$ (確認範囲)



平衡酸素分圧依存性データの微粒子発生量は、上限値より一桁程度低いにも関わらず0.5乗則となっているため、 y の指数は0.5乗とした。

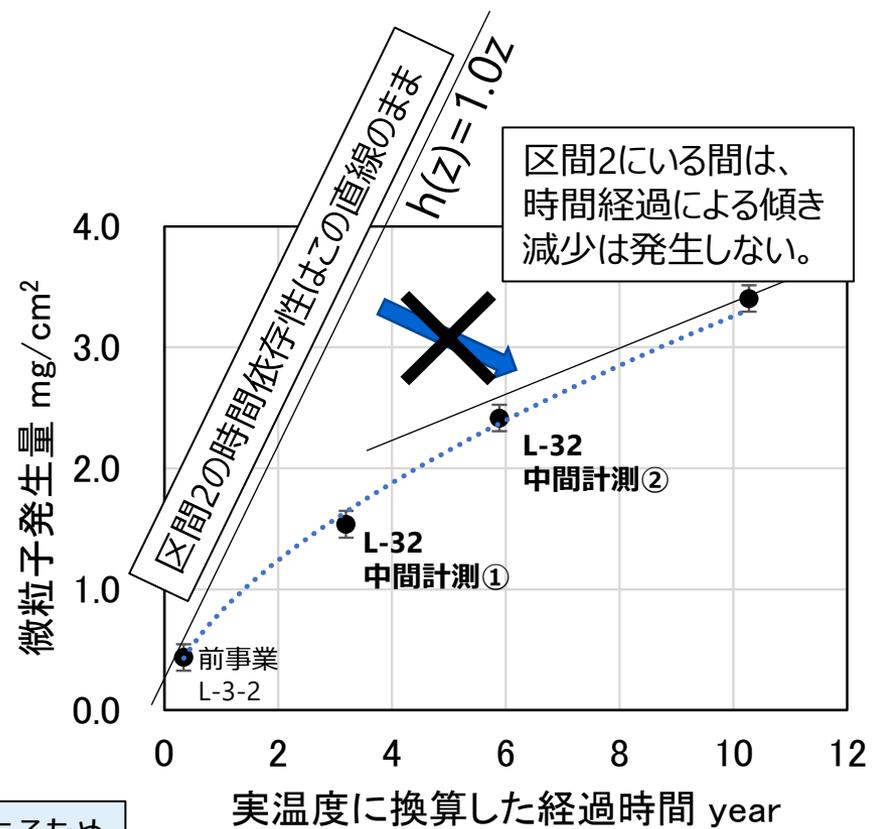
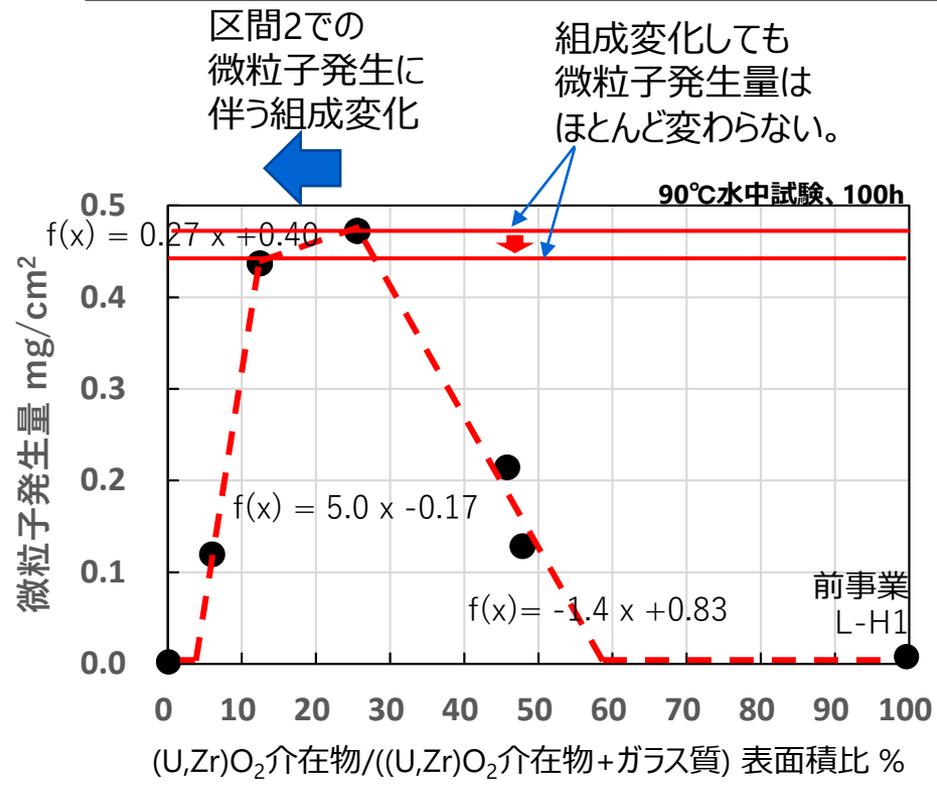
経時式が上限値に向かう式は複数考えられるが、ここでは $1 - \exp$ の式を用いて検討を行う。

5. 実施内容

(2) 1F燃料デブリにおける経年変化の推定

▶ (U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの水中経年変化（長期挙動） 従属性の検討

$f(x) = 0.27x + 0.40$ ($0.12 \leq x \leq 0.26$)で表される区間（区間2）について考えると、
 区間2では、微粒子の発生に伴ってxが減少しても、区間1に達する前は、時間経過による傾きの減少はほとんど発生しないと考えられる。長期挙動は傾きを減じないために直線状であると考えられ、L-32試験(x=0.12)での試験開始直後の微粒子発生速度がそのまま継続されるとして、 $h(z) = 1.0z$ (zは経過時間(年))となる。



区間1に達するまでは、hはf,gに依存せず、f,g,hは互いに独立であるため、xの変動が区間2内に収まっている場合の微粒子発生量の定量式は、 $R(x,y,z) = 5.2 \times (0.27x + 0.40) \times 1.0y^{0.5} \times 1.0z$ となる。

5. 実施内容

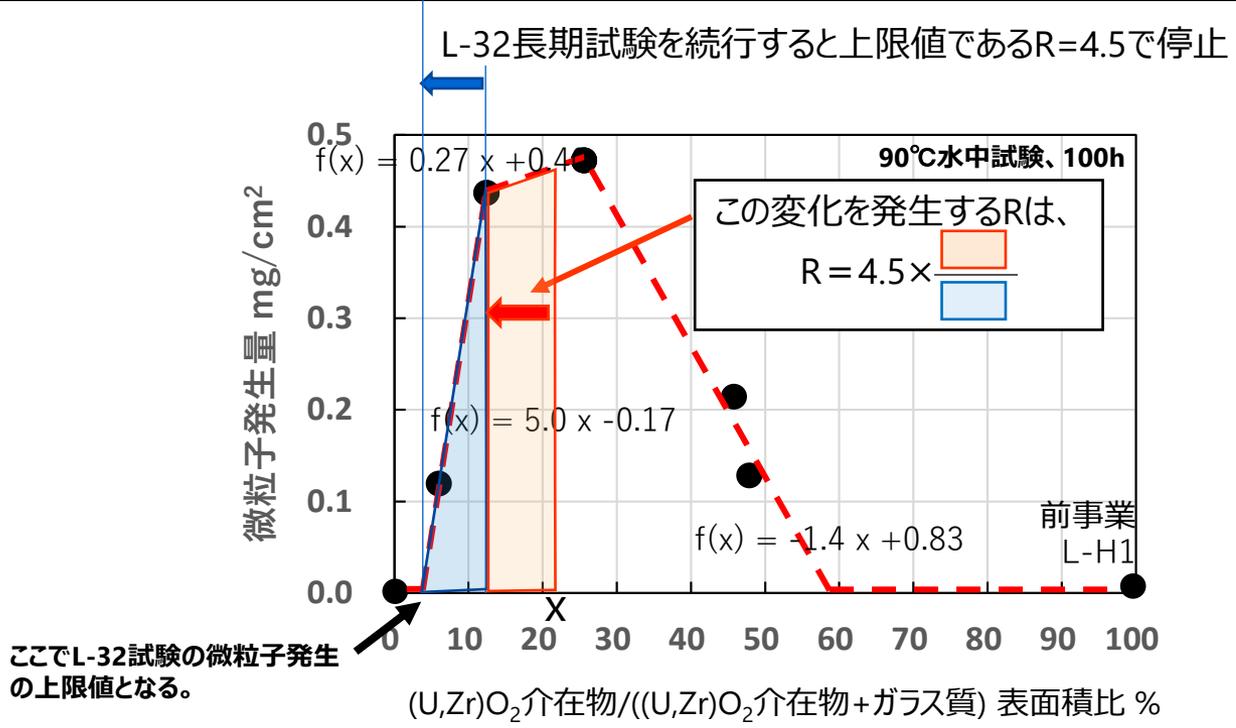
(2) 1F燃料デブリにおける経年変化の推定

▶ (U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの水中経年変化（長期挙動） 従属性の検討

Xの変動が区間2に収まる範囲の検討

L-32長期試験を継続した際を考えると、微粒子発生量は上限値であるR=4.5で停止する。このとき、4.5は、 で示した面積に比例していると考え。この比例関係が区間2においても成り立つとすると、4.5の / 倍の微粒子が発生した際に、区間2内の任意の x は区間1に達することになる。4.5の / 倍は、 $110 \times (x - 0.12)$ と計算される。すなわち、 $R > 110 \times (x - 0.12)$ で、区間1に移行する。

区間を移行した際には、zをゼロ、xを区間を移行した際のxとして、区間1の式である $R(x,y,z) = 10 \times (5.0x - 0.17) \times (1 - \exp(-0.31y^{0.5}z))$ に従う。



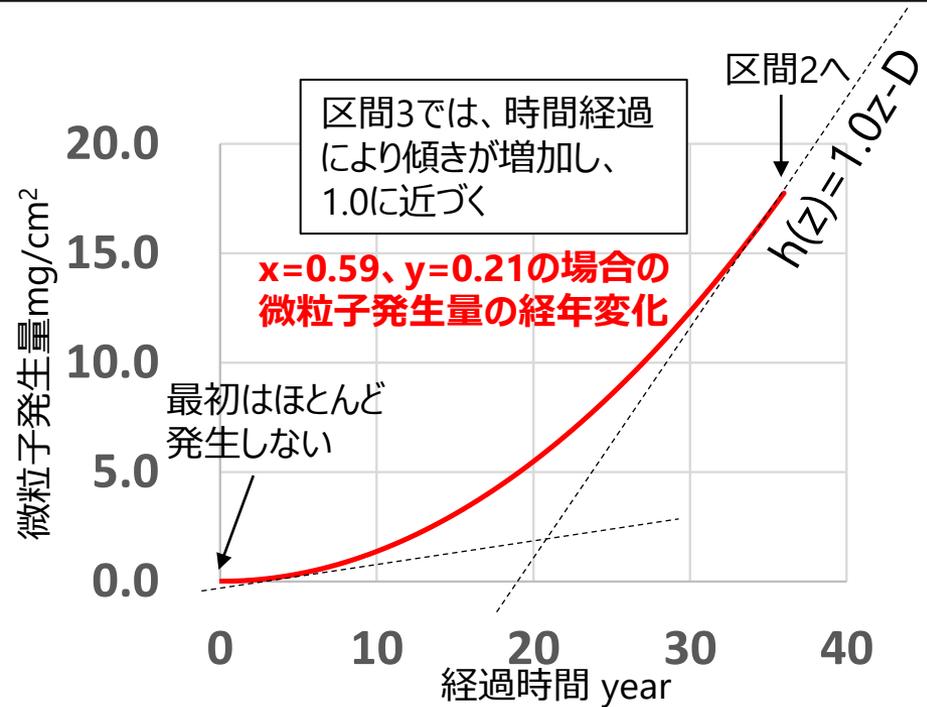
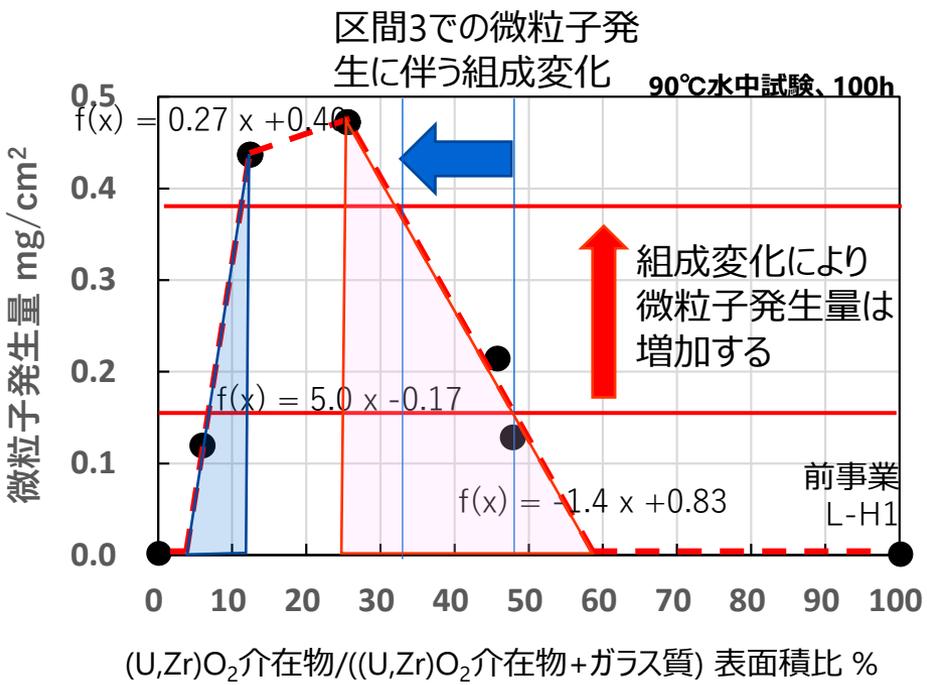
5. 実施内容

(2) 1F燃料デブリにおける経年変化の推定

▶ (U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの水中経年変化（長期挙動） 従属性の検討

$f(x) = -1.4x + 0.83$ ($0.26 \leq x \leq 0.59$)で表される区間（区間3）について考える。
 区間3の長期挙動は、微粒子の発生に従って微粒子発生量が増加していき、介在物の表面積比が減じて区間2に達するところで $h(z)$ の傾きが1.0($y=0.21$ の場合)となる。ここでは横軸の移動が一定速度であることを仮定して、右下図に示す面積に応じて微粒子発生量が増加すると考えると、時間依存式の形は放物線 $h(z) = A \times (z - B)^2 + C$ となる。区間3全体を x が移動した際に生じる微粒子発生量を右下図の区間1との面積比から求めると、 A を求めることができる。 A は放物線の上昇割合を決めるため $y^{0.5}$ の因子を持つ。 B は放物線のどの位置から時間依存式を開始するか決めるものであるため $(0.59 - x)$ と $(-0.14x + 0.83)$ を因子に持つ。 C は、 $z=0$ の時に $R=0$ となるように定める。その結果、区間3の微粒子発生量は、以下の式となる。

$$R(x, y, z) = 0.030 \times y^{0.5} \times ((z + 230 \times (-1.4x + 0.83) \times (0.59 - x))^2 - (230 \times (-1.4x + 0.83) \times (0.59 - x))^2)$$
 なお、 $R > 120 \times (x - 0.26) \times (-1.4x + 1.3)$ で区間2に移行し、 z をゼロ、 x を区間を移行した際の x として区間2の式に従う。



5. 実施内容

(2) 1F燃料デブリにおける経年変化の推定

▶ (U,Zr)O₂ 介在ガラス状燃料デブリの水中経年変化（長期挙動） 従属性の検討

以上をまとめて整理すると、微粒子発生量の定量式は、以下となる。

- $x \leq 0.034$ のとき、 $R(x,y,z) = 0$
- $0.034 \leq x \leq 0.12$ のとき、 $R(x,y,z) = 10 \times (5.0x - 0.17) \times (1 - \exp(-0.31y^{0.5}z))$
- $0.12 \leq x \leq 0.26$ のとき、
 - ✓ $R \leq 110 \times (x - 0.12)$ の範囲では、 $R(x,y,z) = 5.2 \times (0.27x + 0.40) \times 1.0y^{0.5} \times 1.0z$
 - ✓ $R > 110 \times (x - 0.12)$ の範囲となった場合、 z をゼロ、 x を範囲を超えたときの x に設定し直したうえで、 $R(x,y,z) = 10 \times (5.0x - 0.17) \times (1 - \exp(-0.31y^{0.5}z))$
- $0.26 \leq x \leq 0.59$ のとき、
 - ✓ $R \leq 120 \times (x - 0.26) \times (-1.4x + 1.3)$ の範囲では、 $R(x,y,z) = 0.030 \times y^{0.5} \times ((z + 230 \times (-1.4x + 0.83)) \times (0.59 - x))^2 - (230 \times (-1.4x + 0.83) \times (0.59 - x))^2$
 - ✓ $120 \times (x - 0.26) \times (-1.4x + 1.3) \leq R \leq 120 \times (x - 0.26) \times (-1.4x + 1.3) + 14$ の範囲では、 z をゼロ、 x を範囲を移動したときの x に設定し直したうえで、 $R(x,y,z) = 5.2 \times (0.27x + 0.40) \times 1.0y^{0.5} \times 1.0z$
 - ✓ $R > 120 \times (x - 0.26) \times (-1.4x + 1.3) + 14$ の範囲では、さらに z をゼロ、 x を範囲を移動したときの x に設定し直したうえで、 $R(x,y,z) = 10 \times (5.0x - 0.17) \times (1 - \exp(-0.31y^{0.5}z))$
- $x \geq 0.59$ のとき、 $R(x,y,z) = 0$

x は (U,Zr)O₂ / ((U,Zr)O₂ + ガラス) 表面積比、 y は平衡酸素分圧 (atm)、 Z は経過時間 (年)
適用範囲、 $0 \leq x \leq 1$ 、 $0 \leq y \leq 0.21$ 、 $0 \leq z \leq 10$ (確認範囲)

5. 実施内容

(1) 微粒子化現象が生じる境界領域を見出し、長期予測性を向上させるための試験方法の立案と実施

◆ 検討対象項目

試験材質	試験方法	① 材料条件の検討	② 環境条件の検討	③ 長期予測性向上の加速試験
Zr(O) ₂ +(U,Zr)O ₂	気中試験	<ul style="list-style-type: none"> ・Zr(O)₂/(U,Zr)O₂比を変数とした試験データ取得済【●】 	<ul style="list-style-type: none"> ・酸素分圧依存性データを取得済【●】 ・空気湿潤影響データを取得【○】 	<ul style="list-style-type: none"> ・温度依存性データ取得【前事業で完了】 ・長時間試験データ取得【○】
FeO+(U,Zr)O ₂ *	気中試験	<ul style="list-style-type: none"> ・FeO/(U,Zr)O₂比を変数とした試験データ取得済【◎】 	<ul style="list-style-type: none"> ・酸素分圧依存性データを取得【○】 	<ul style="list-style-type: none"> ・温度依存性データを取得【○】
(U,Zr)O ₂ 介在ガラス状燃料デブリ	水中試験	<ul style="list-style-type: none"> ・(U,Zr)O₂/SiO₂比を変数とした試験データ取得済【◎】 	<ul style="list-style-type: none"> ・平衡酸素分圧依存性データを取得済【●】 ・ホウ酸影響試験済【●】 ・水流付与試験済【◎】 	<ul style="list-style-type: none"> ・温度依存性データ取得【前事業で完了】 ・長時間試験データ取得【○】
FeO+(U,Zr)O ₂ 介在ガラス状燃料デブリ	水中試験	<ul style="list-style-type: none"> ・(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの結果から推定【○】 	<ul style="list-style-type: none"> ・水中試験後乾燥の影響試験済み【●】 ・平衡酸素分圧依存性データを取得済み【◎】 	<ul style="list-style-type: none"> ・(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの結果から推定【○】
	気中試験*	<ul style="list-style-type: none"> ・FeO+(U,Zr)O₂の結果と比較して推定【○】 	<ul style="list-style-type: none"> ・酸素分圧依存性データを取得【○】 	<ul style="list-style-type: none"> ・FeO+(U,Zr)O₂の結果と比較して推定【○】

【●】2021年度完了、【◎】2022年度上期完了、【○】2022年度下期完了

5. 実施内容

(1) ②微粒子化を発生する環境条件範囲の検討

▶ FeO+(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの水中経年変化（環境条件）

✓ 乾燥時腐食層脱離による影響を検討する。

乾燥時腐食層脱離の影響

➤ 水中で生じた微粒子が燃料デブリ表層に留まったまま取り出された場合、取り出し後の乾燥工程で過剰な微粒子が気中に放出される可能性がある。

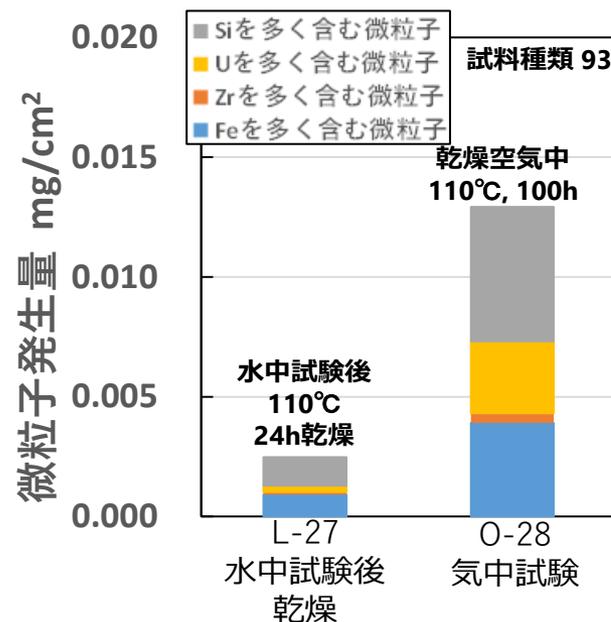
L-27試験：
水中試験後乾燥時の微粒子発生有無を確認

試験手順

- (1)90°C×100hの水中試験後、水中で30°Cに冷却
- (2)110°Cに予熱した乾燥空気中へ、濡れたままの試料を速やかに移動
- (3)24時間後に乾燥容器内から回収した微粒子量を測定



✓ 24時間乾燥後に回収された微粒子量は、100時間の乾燥空気中で発生した微粒子量の24/100に近く、24時間の気中暴露の影響であると考えられる。
⇒燃料デブリが水中に存在していても、**加熱後乾燥による微粒子発生への影響はない**と推定される。



5. 実施内容

(1)①燃料デブリの組成や相状態の範囲の検討

▶ FeO+(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの水中経年変化（材料条件）

✓ 平衡酸素分圧依存性データを取得する。他項目の微粒子発生挙動との類似性を考察して推定を行う。

微粒子発生挙動は、前事業にて、
(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリからの(U,Zr)O₂微粒子の発生量
FeO介在ガラス状燃料デブリからのFe酸化物微粒子の発生量
の**合計**に近いことが実験的に示唆された。



発生する微粒子のうちUを含むものが大きな放射能を有していると考えられるため、両方同時に発生する場合、Feを主成分として含む粒子よりも**Uを主成分として含む微粒子の発生挙動が重要**となるため、ここでは、(U,Zr)O₂微粒子の発生のみ評価する。

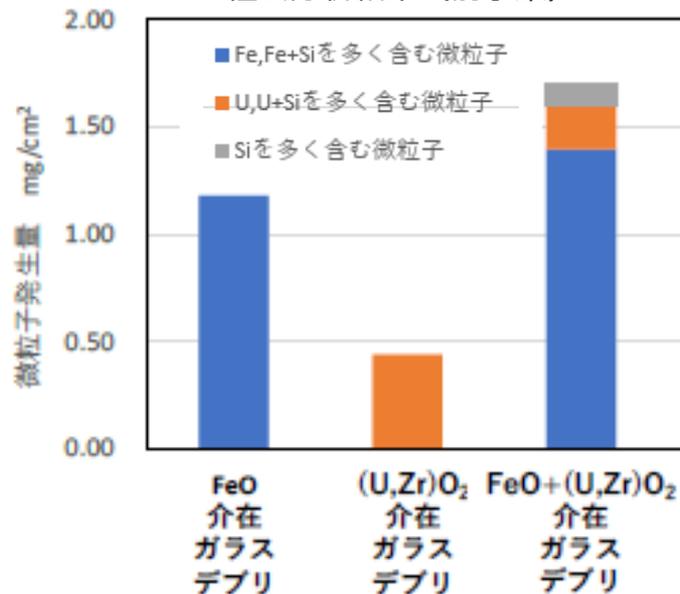


✓ 材料条件についての(U,Zr)O₂微粒子発生量は、(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリからの(U,Zr)O₂微粒子の発生挙動を参照する。

✓ FeOも酸化要因であるので、平衡酸素分圧依存性については、試験による確認を行う。

✓ 長期挙動は、上記を確認した上で、(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリからの微粒子発生挙動を参照する。

水中試験(90℃×100h)で発生した微粒子の組成分析結果（前事業）

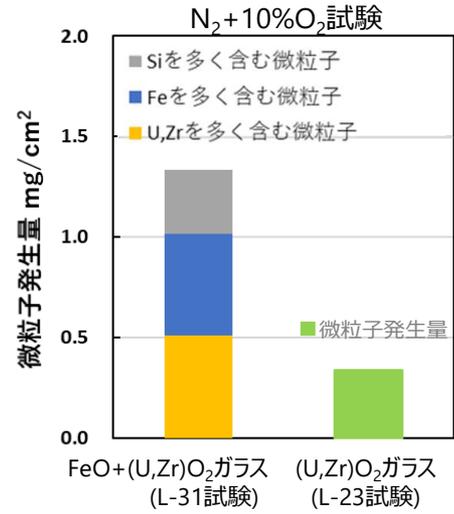
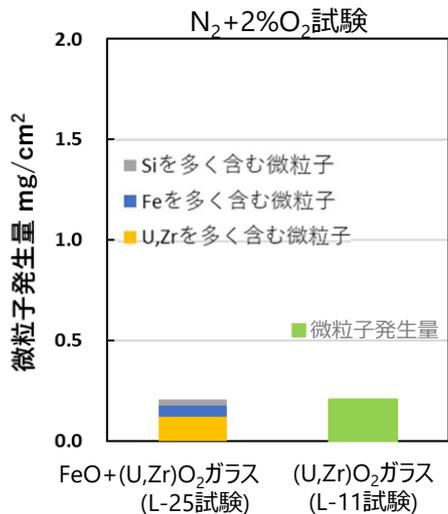
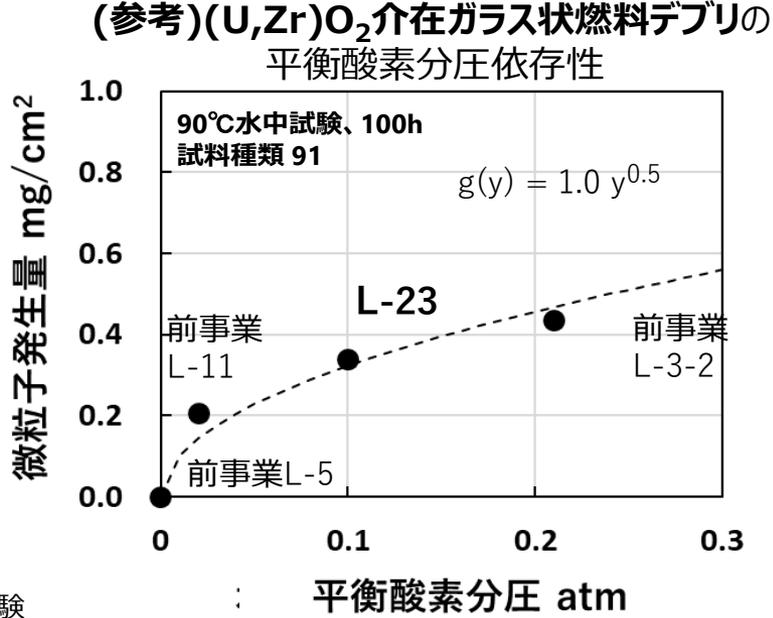
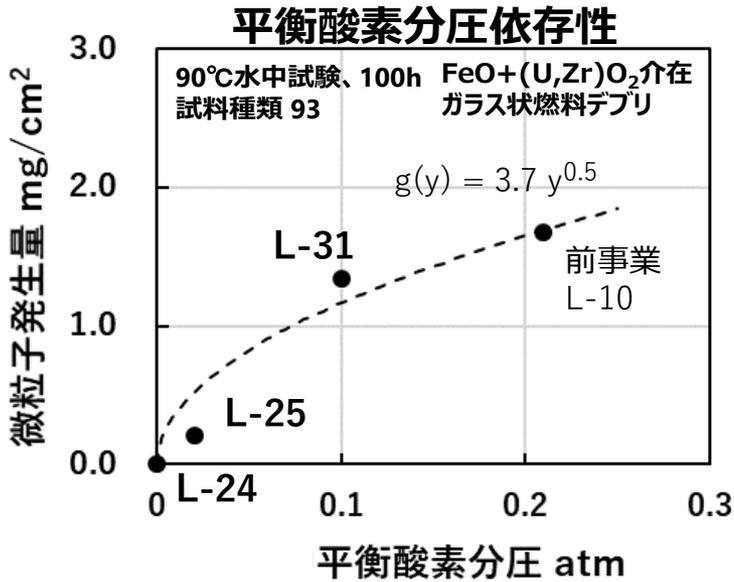


5. 実施内容

(1)②微粒子化を発生する環境条件範囲の検討

▶ FeO+(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの水中経年変化（環境条件）（長期挙動）

✓ 平衡酸素分圧依存性データを取得する。他項目の微粒子発生挙動との類似性を考察して推定を行う。



✓ 酸素分圧の1/2乗に比例する傾向が(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリと一致する。

✓ 低酸素分圧平衡水中でも、U,Zrを多く含む微粒子量は、(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの微粒子発生量に近い。

5. 実施内容

(1) ③長期予測性を向上させるための加速試験の実施

▶ FeO+(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの水中経年変化（環境条件）（長期挙動）

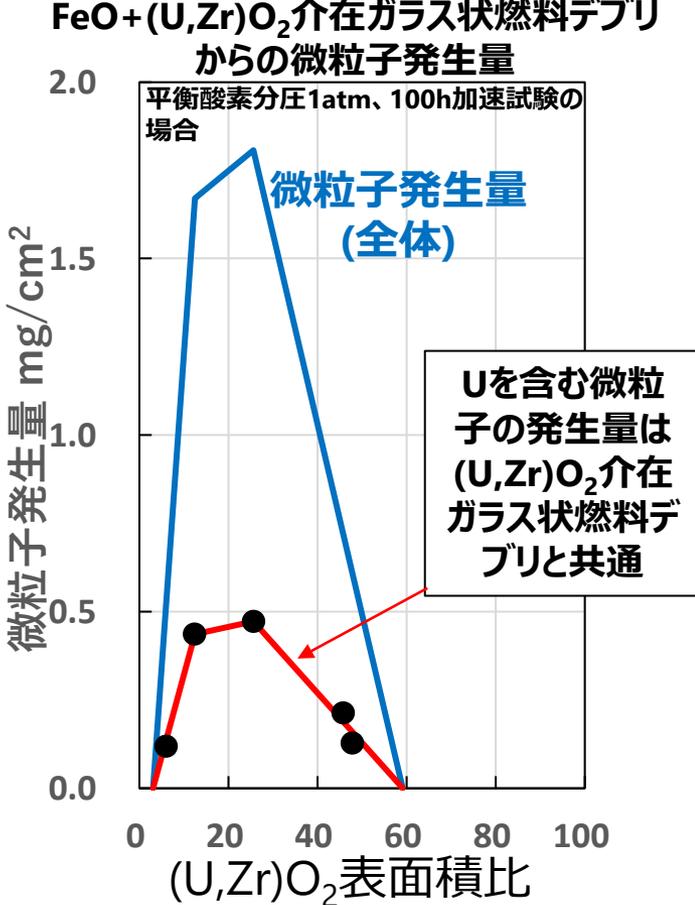
✓ 平衡酸素分圧依存性データを取得する。他項目の微粒子発生挙動との類似性を考察して推定を行う。

- ✓ FeO+(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの微粒子発生の平衡酸素分圧依存性も、平衡酸素分圧の1/2乗に比例する傾向であり、(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリと同様である。
- ✓ FeO+(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリから発生した微粒子のうち、**大きな放射能を有していると考えられるUを多く含む微粒子の発生量**は、平衡酸素分圧に関わらず、(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリから発生する微粒子量に近い。



組成側、環境側でのUを多く含む微粒子の挙動は似ており、その発生メカニズムが同一であると考えられることから、**Uを多く含む微粒子については、その長期挙動についても、(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリと同じであると考えられる。**

水中でFeO+(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリから**発生する微粒子のうち、Uを多く含む微粒子の発生量R(x,y,z)は、前述の(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの推定式を用いて評価**する。なお、この材質について、放射能が低いと考えられる微粒子を含めた微粒子全体の発生量は右図のようになるが、評価は実施しない。



$$(U,Zr)O_2 \text{ 表面積比} = \frac{(U,Zr)O_2 \text{ 表面積}}{\text{FeO}+(U,Zr)O_2 + \text{ガラス質 表面積}}$$

5. 実施内容

(2) 1F燃料デブリにおける経年変化の推定

▶ 微粒子化する可能性がある燃料デブリの存在位置の設定

経年変化により微粒子化する燃料デブリの推定存在位置、及び、微粒子化する環境

◆ 1,2,3号機のRPV内部、RPV下部、ペDESTAL床上

燃料デブリの種類	微粒子化する環境条件
Zr(O) + (U,Zr)O ₂	酸素を含む気中
FeO + (U,Zr)O ₂	酸素を含む気中

◆ 1,3号機のペDESTAL床下

燃料デブリの種類	微粒子化する環境条件
(U,Zr)O ₂ 介在ガラス状燃料デブリ	酸素分圧下水中
FeO+(U,Zr)O ₂ 介在ガラス状燃料デブリ	酸素分圧下水中、及び、酸素を含む気中

燃料デブリの推定存在位置^[1]

↓

微粒子発生量評価が必要

・今後燃料デブリ取り出し経年変化を評価すべき燃料デブリの場所を、先行PJ^[1]成果に基づいて号機毎に設定した。
 ・今後おかれる低酸素分圧下水中または気中で微粒子化する可能性があるZr(O)+(U,Zr)O₂、FeO+(U,Zr)O₂、(U,Zr)O₂ 介在ガラス状燃料デブリ、FeO+(U,Zr)O₂ 介在ガラス状燃料デブリについて、予測式を用いて経年変化の推定を実施した。

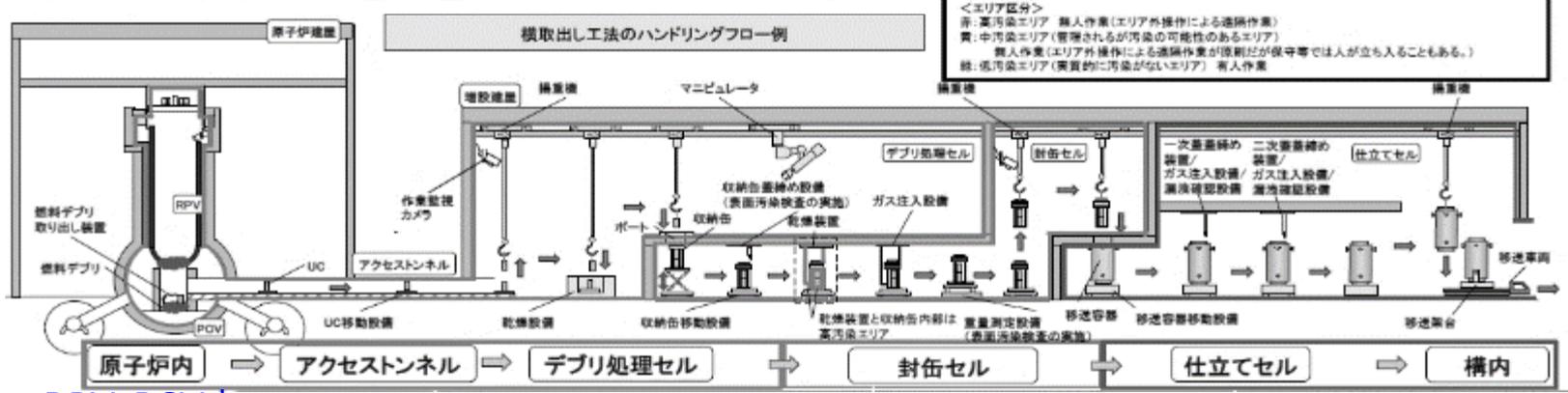
[1] IRID「廃炉・汚染水対策事業費補助金（総合的な炉内状況把握の高度化）」平成29年度成果報告、
https://irid.or.jp/_pdf/20170000_01.pdf

5. 実施内容

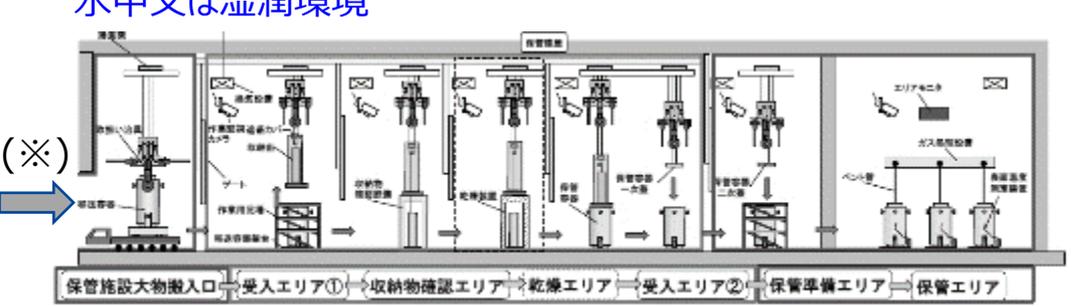
(2) 1F燃料デブリにおける経年変化の推定

▶ 収納・移送・保管工程の環境変化の推定

燃料デブリ収納・移送・保管工程のハンドリングフロー検討例^[1]



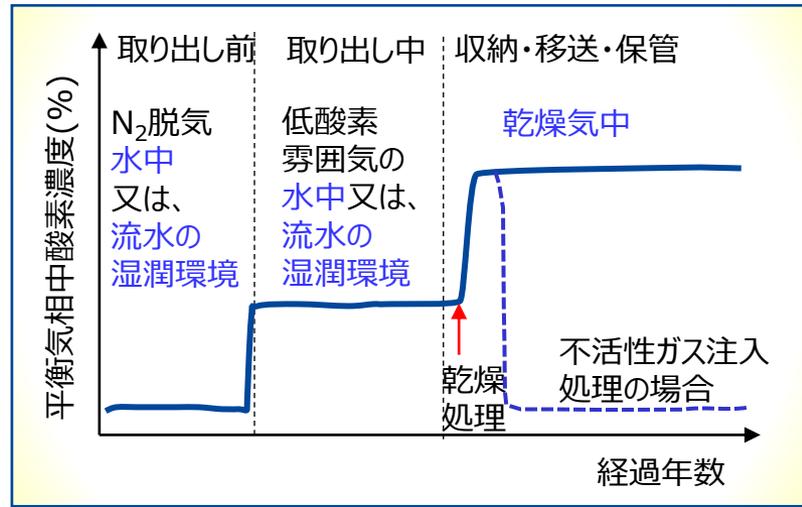
RPV・PCV内： 水中又は湿潤環境 湿潤環境 乾燥処理により気中 不活性ガス注入



ガスバントしながら保管

取り出しから収納・移送・保管に至る環境変化を、関連PJ^[1]の検討例に基づいて設定。取り出し時には低酸素雰囲気中の湿潤環境に移行し、続いて、収納・移送時の乾燥処理により気中に移行し、保管管理されるものと設定した。

環境条件の時間変化の模式図



(注) 酸素濃度 (%) = 酸素分圧 (atm) × 100

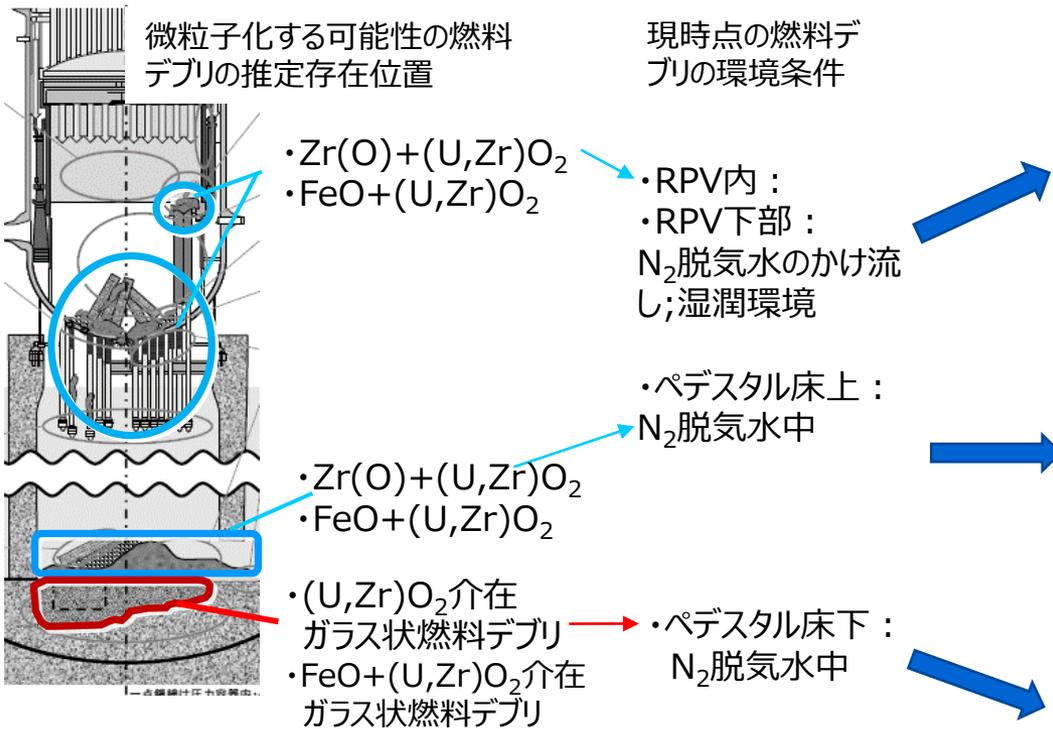
[1] IRID、「廃炉・汚染水対策事業費補助金（燃料デブリ収納・移送・保管技術の開発）」令和元年度実施分報告の図を引用。https://irid.or.jp/wp-content/uploads/2020/09/2019010syuunouisouhokan.pdf

5. 実施内容

(2) 1F燃料デブリにおける経年変化の推定

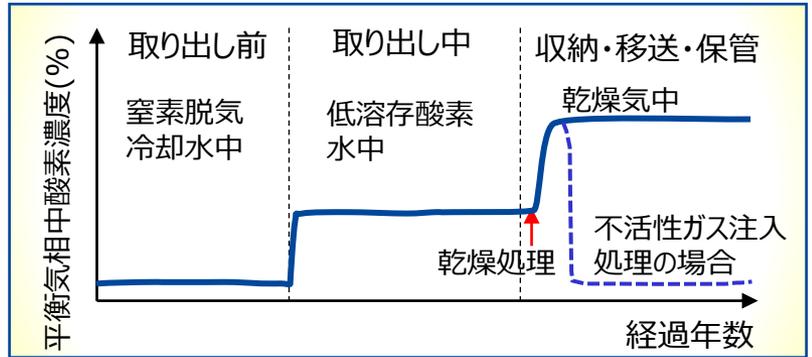
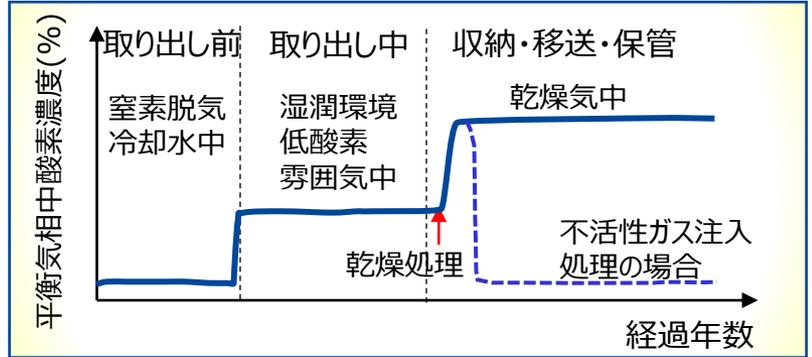
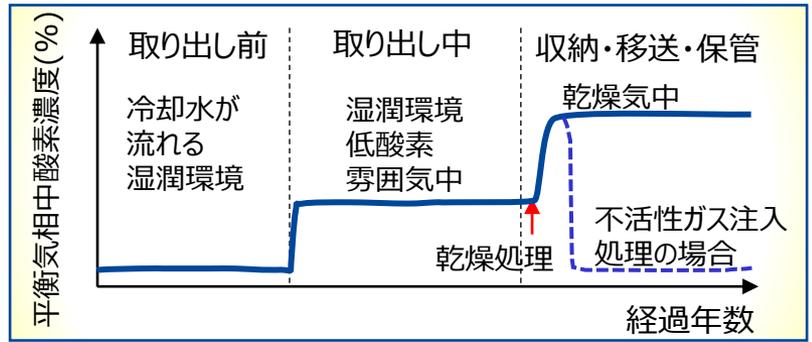
▶ 燃料デブリの環境変化の設定

3号機の場合



評価すべき燃料デブリについて、号機と場所ごとに取り出し前から取り出し中・収納・移送・保管に至る環境変化を設定した。

設定した環境変化に基づいて、号機と場所毎に燃料デブリの微粒子発生量を、予測式を用いて推定した。



※1Fの燃料デブリ保管条件は、乾燥処理後気中環境と設定した。

(注) 酸素濃度 (%) = 酸素分圧 (atm) × 100

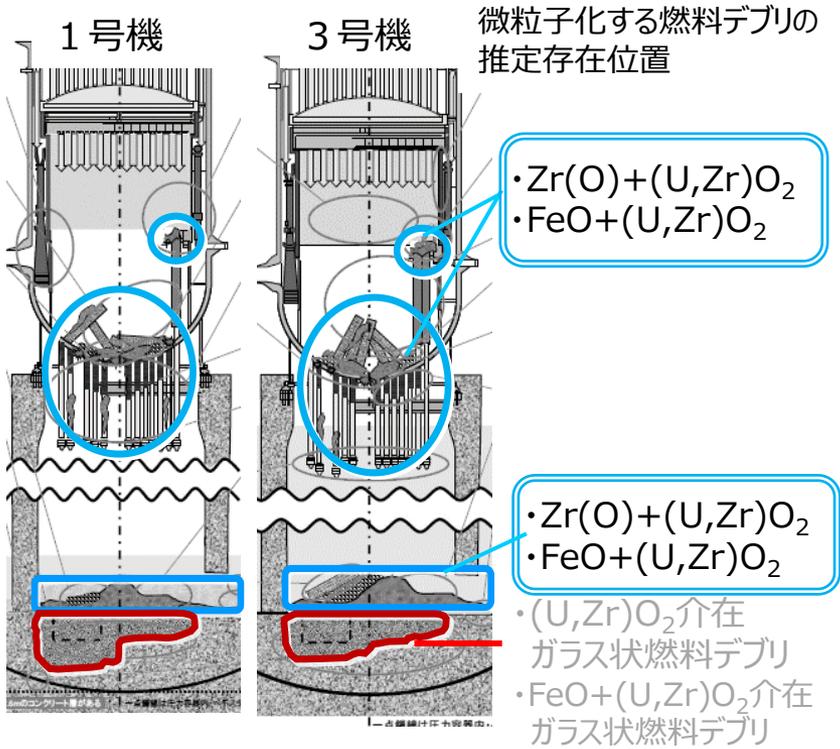
5. 実施内容

(2) 1F燃料デブリにおける経年変化の推定

▶ 1, 3号機 ; $Zr(O) + (U,Zr)O_2$ 及び $FeO + (U,Zr)O_2$, 微粒子発生量の推定

◆ 推定存在位置と現時点の環境条件

- $Zr(O) + (U,Zr)O_2$ 、 $FeO + (U,Zr)O_2$ の存在位置は1, 3号機で共通し、RPV内部、RPV下部、及び、ペDESTAL床上である。現時点の環境条件は、いずれも N_2 脱気水の湿潤環境、あるいは N_2 脱気水中である。
- 次頁の評価では、取り出し・乾燥処理され、気中環境に移行する環境変化2ケースを代表例として設定し、微粒子発生量を推定した。



◆ 予測式の設定

• $Zr(O) + (U,Zr)O_2$ の場合*

$$R(x, y, z) = 19.4 \cdot (0.0076x - 0.0007) \cdot (1 - \exp(-0.56yz)) \dots (1)$$

x : $Zr(O)/(Zr(O) + (U,Zr)O_2)$ の比、 y : 気中酸素分圧、 z : 年数

* 確認範囲 $0 \leq z \leq 34$ 年の予測式のため、34年以上は外挿評価

• $FeO + (U,Zr)O_2$ の場合**

$$R(x, y, z) = 2.6 \cdot (0.015x - 0.0027) \cdot (1 - \exp(-50yz)) \dots (2)$$

x : $FeO/(FeO + (U,Zr)O_2)$ の比、 y : 気中酸素分圧、 z : 年数

** 確認範囲 $0 \leq z \leq 0.091$ 年の予測式のため、0.091年以上は外挿評価

◆ 微粒子発生量の計算条件

- 微粒子化は水中で発生せず、気中において発生すると設定。よって取り出し・乾燥処理後からの経過年数と酸素分圧を変数として評価した。
- 材料組成比については、 $Zr(O) + (U,Zr)O_2$ の場合、U含有粒子の発生量が最も大きい $x = 0.55$ で評価。
 $FeO + (U,Zr)O_2$ の場合、U含有粒子の発生量が最も大きい $x = 0.6$ で評価。

予測式による微粒子発生量の計算方法 (ガイド)

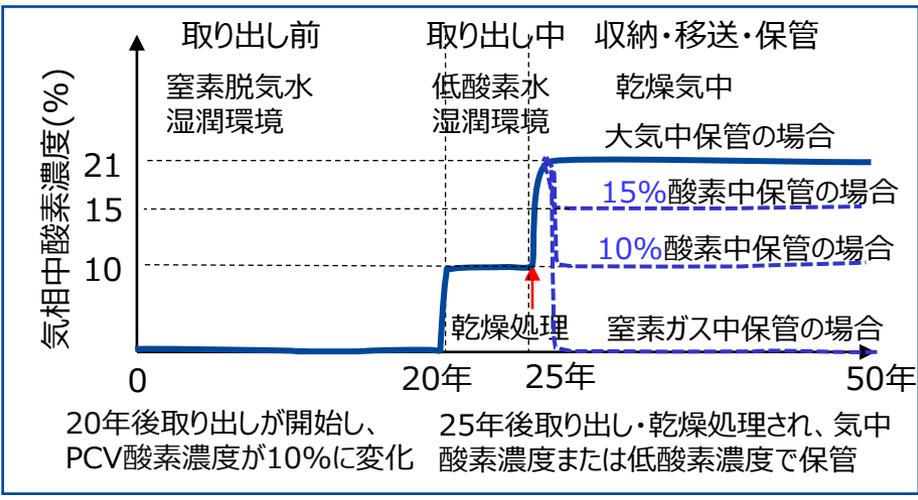
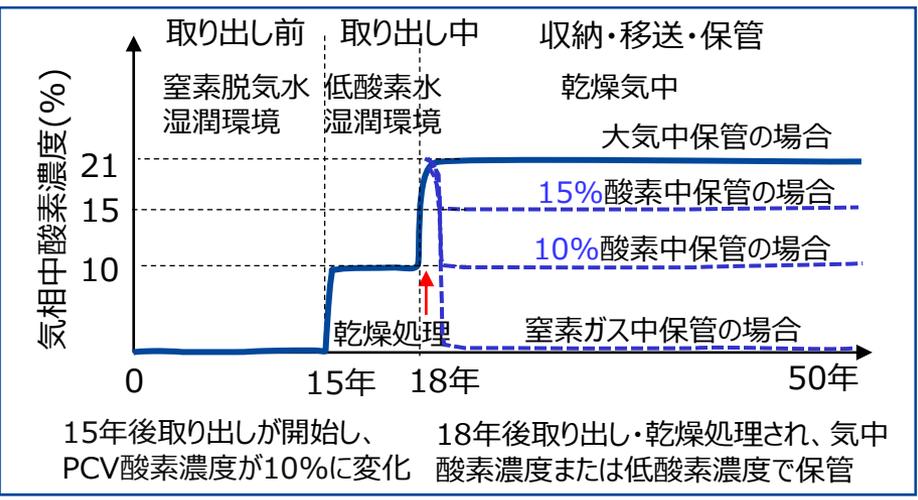
- 乾燥処理後、気中保管される時点から、(1)(2)式を用いて計算する。
- 材料組成比 ($0 < x < 1$) を x に代入する。 x が未知の時、発生量最大となる $x = 0.55$ ($Zr(O) + (U,Zr)O_2$)、または $x = 0.6$ ($FeO + (U,Zr)O_2$) で評価してもよい。
- 気中酸素分圧 ($0 < y \leq 0.21$) を y に代入する。(大気中は $y = 0.21$)
- 気中保管される経過年数を z に代入する。

5. 実施内容

(2) 1F燃料デブリにおける経年変化の推定

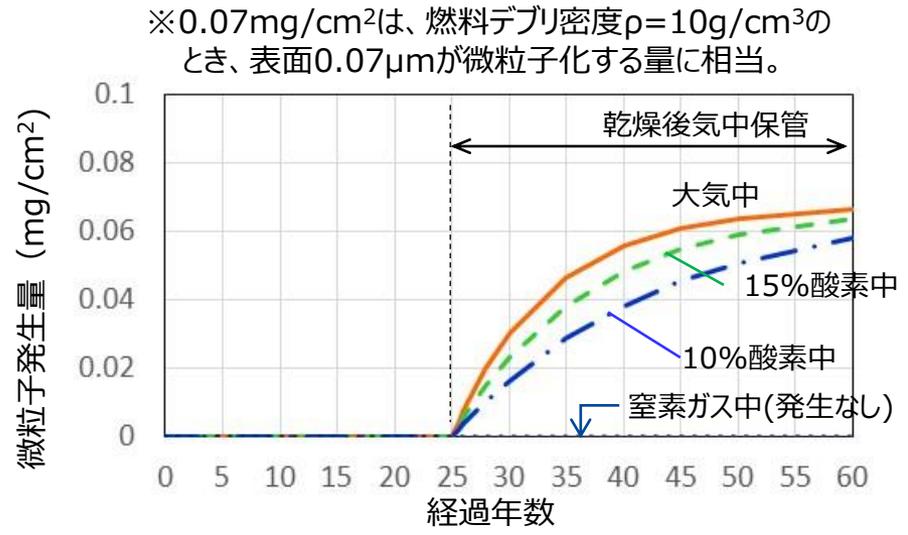
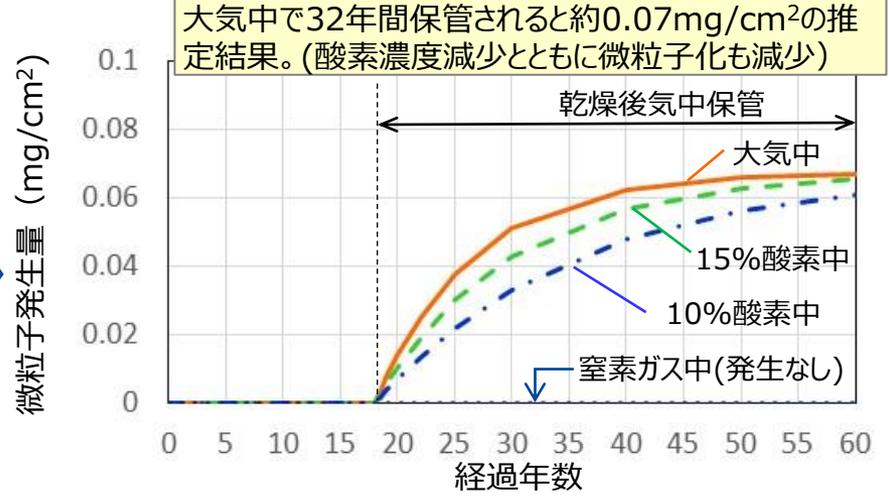
▶ 1, 3号機 ; $Zr(O) + (U,Zr)O_2$, 微粒子発生量の推定

◆ 経過年数と環境条件の設定



(注) 酸素濃度 (%) = 酸素分圧 (atm) × 100

◆ 微粒子発生量の計算結果*



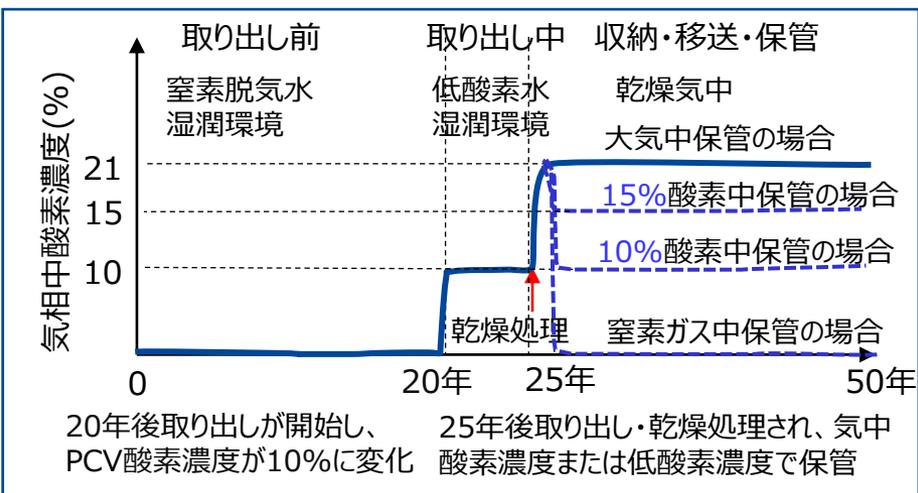
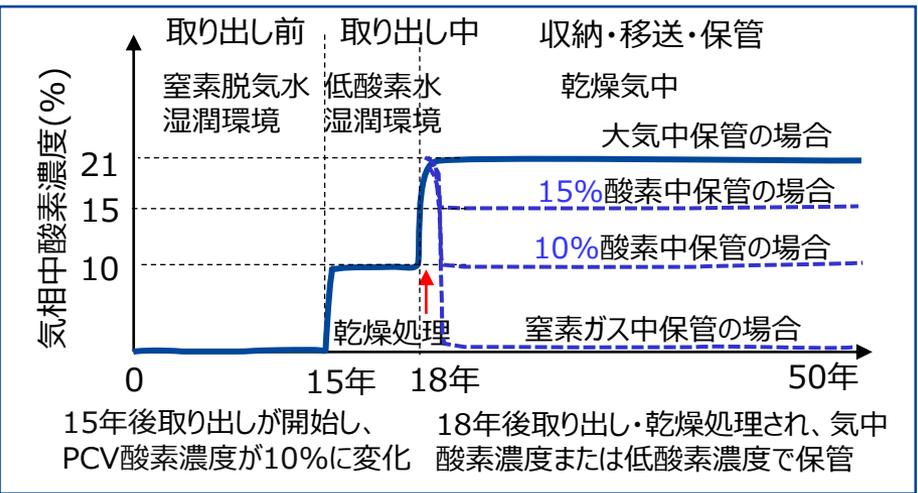
* 確認範囲 $0 \leq z \leq 34$ 年の予測式のため、微粒子化開始後34年以降は外挿評価

5. 実施内容

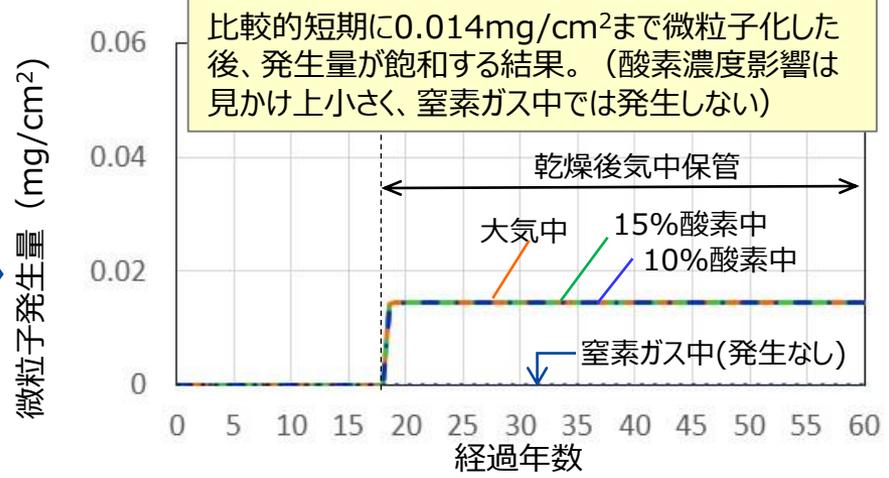
(2) 1F燃料デブリにおける経年変化の推定

▶ 1, 3号機 ; $FeO+(U,Zr)O_2$, 微粒子発生量の推定

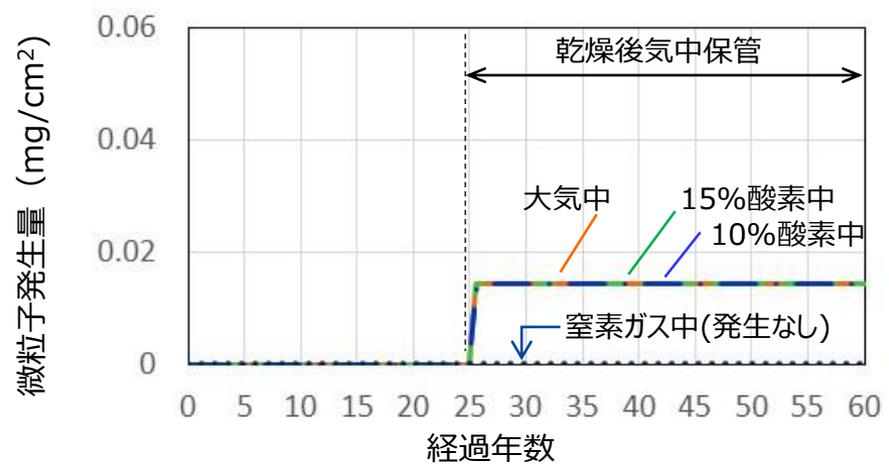
◆ 経過年数と環境条件の設定



◆ 微粒子発生量の計算結果*



※0.014mg/cm²は、燃料デブリ密度 $\rho=10g/cm^3$ のとき、表面0.014 μm が微粒子化する量に相当。



(注) 酸素濃度 (%) = 酸素分圧 (atm) × 100

* 確認範囲 $0 \leq z \leq 0.091$ 年の予測式のため、微粒子化開始後0.091年以降は外挿評価

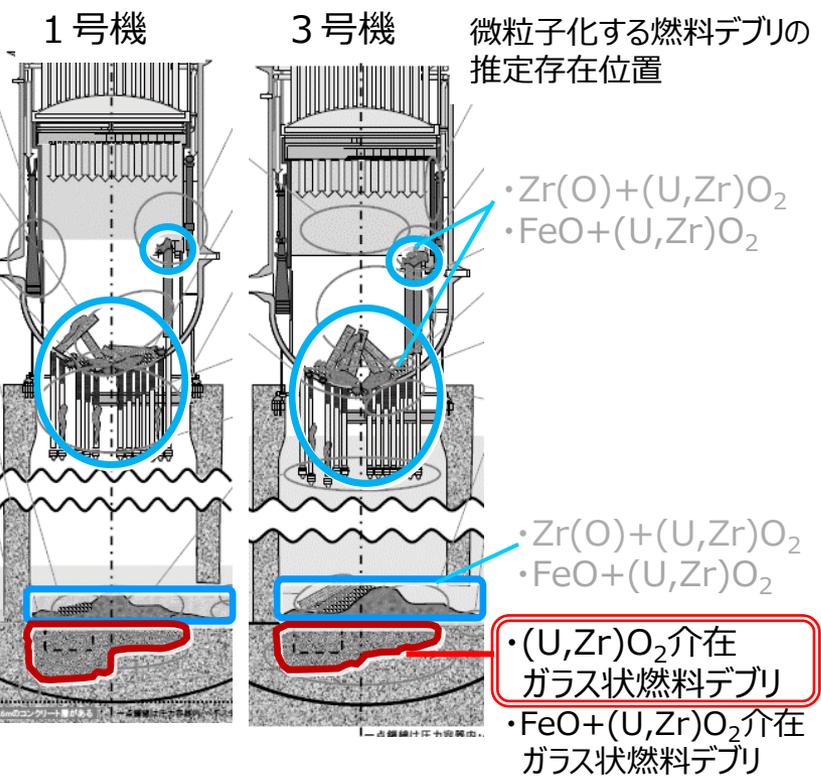
5. 実施内容

(2) 1F燃料デブリにおける経年変化の推定

▶ 1, 3号機 ; (U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリ, 微粒子発生量の推定

◆ 推定存在位置と現時点の環境条件

- (U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの存在位置は1, 3号機で共通し、ペDESTAL床下である。現時点の環境条件は、いずれもN₂脱気水中である。
- 次頁の評価では、取り出し・乾燥処理され、気中環境に移行する環境変化2ケースを代表例として設定し、微粒子発生量を推定した。



◆ (U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの予測式の設定*

$x \leq 0.034$ のとき、 $R(x,y,z)=0$ * 確認範囲 $0 \leq z \leq 10$ 年の予測式のため、10年以上は外挿評価

$0.034 \leq x \leq 0.12$ のとき、

$$R(x,y,z) = 10 \times (5.0x - 0.17) \times (1 - \exp(-0.31y^{0.5}z)) \cdots (3)$$

$0.12 \leq x \leq 0.26$ のとき、

$R \leq 110 \times (x - 0.12)$ の範囲は、

$$R(x,y,z) = 5.2 \times (0.27x + 0.40) \times 1.0y^{0.5} \times 1.0z \cdots (4)$$

$R > 110 \times (x - 0.12)$ の範囲は、

$$R(x,y,z) = 10 \times (5.0x - 0.17) \times (1 - \exp(-0.31y^{0.5}z)) \cdots (3)$$

x : (U,Zr)O₂/((U,Zr)O₂+SiO₂)の比、 y : 気中酸素分圧、 z : 年数

◆ 微粒子発生量の計算条件

- (U,Zr)O₂+ガラス状燃料デブリの場合、微粒子化は水中で発生し、気中では発生しないと設定。よって取り出し中の経過年数と酸素分圧を変数として評価した。
- 材料組成比は、微粒子発生量が多い $x = 0.26$ と設定。

予測式による微粒子発生量の計算方法 (ガイド)

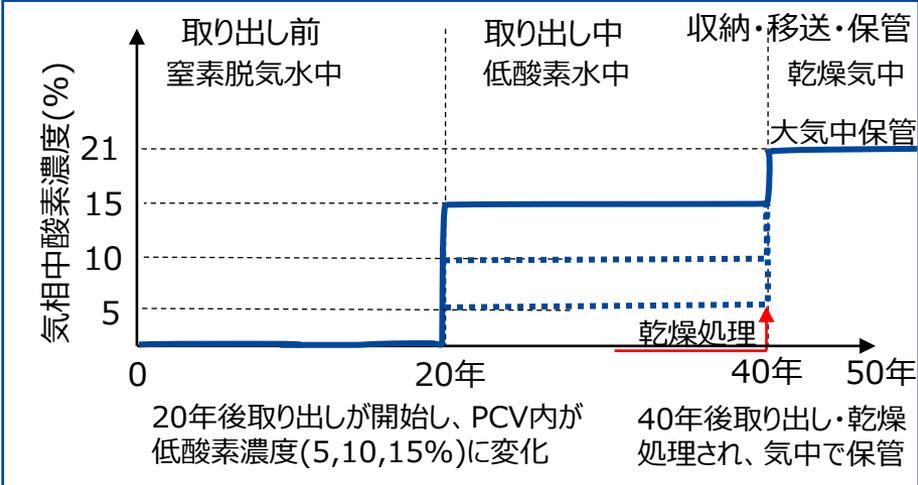
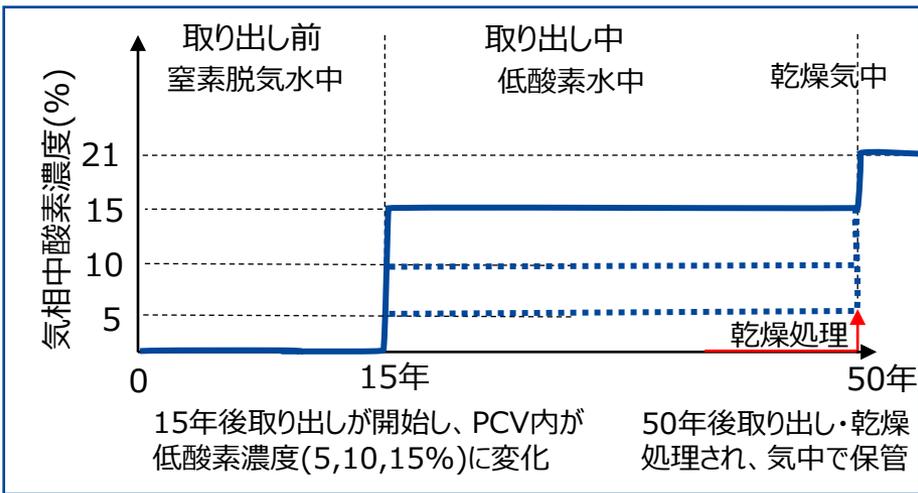
- 水中酸素分圧が上昇する時点から取り出し乾燥までの期間を計算する。
- 材料組成比 $x \leq 0.034$ の場合、微粒子発生量は0 (ゼロ)。
- $0.034 \leq x \leq 0.12$ の場合、(3)式に x と気中酸素分圧 y ($0 < y \leq 0.21$)、経過年数 z を代入して計算する。
- $0.12 \leq x \leq 0.26$ の場合、(4)式に x と気中酸素分圧 y 、経過年数 z を代入して計算する。もし $R(x,y,z)$ の計算値が $110 \times (x - 0.12)$ の値を上回った場合、以降の微粒子発生量を(3)式で計算し、 $110 \times (x - 0.12)$ の値に加算する。この時(4)式の x には0.12を代入し、 z には(4)式に移行した時を0(ゼロ)とする経過年数を代入する。
- $0.26 \leq x \leq 0.59$ の場合、p.65に示す推定手順に基づき計算する。

5. 実施内容

(2) 1F燃料デブリにおける経年変化の推定

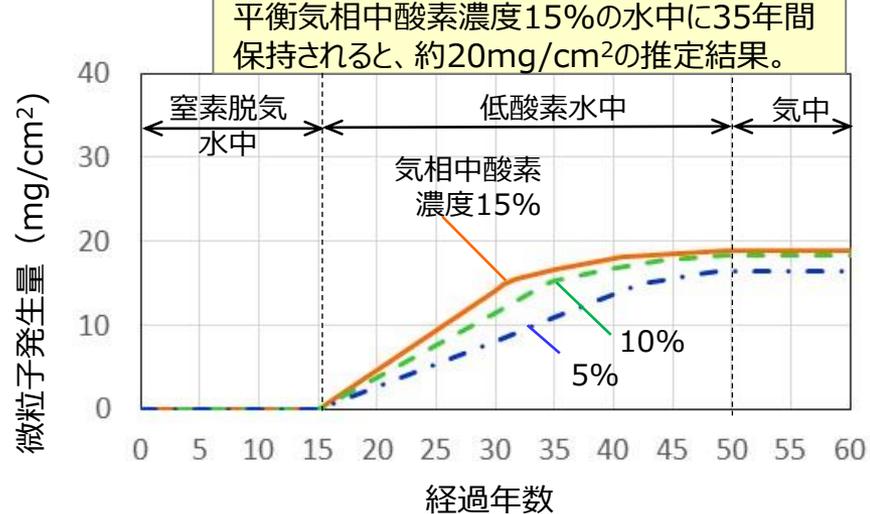
▶ 1, 3号機 ; (U,Zr)O₂ 介在ガラス状燃料デブリ, 微粒子発生量の推定

◆ 経過年数と環境条件の設定

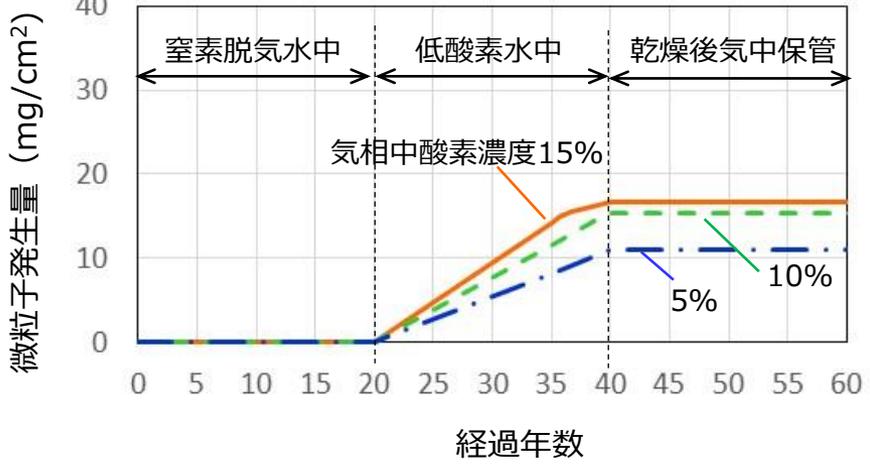


(注) 酸素濃度 (%) = 酸素分圧 (atm) × 100

◆ 微粒子発生量の計算結果*



※20mg/cm²は、燃料デブリ密度ρ=10g/cm³のとき、表面20μmが微粒子化する量に相当。



* 確認範囲 0 ≤ z ≤ 10年の予測式のため、微粒子化開始後10年以降は外挿評価

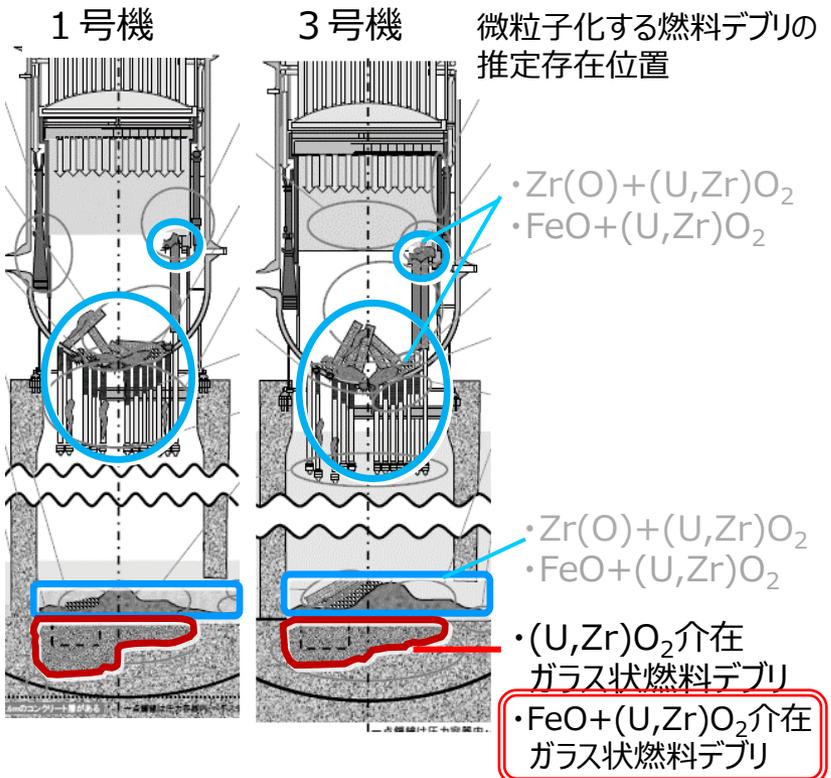
5. 実施内容

(2) 1F燃料デブリにおける経年変化の推定

▶ 1, 3号機 ; FeO+(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリ, 微粒子発生量の推定

◆ 推定存在位置と現時点の環境条件

- FeO+(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの存在位置も、前述の(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリと同様であり、1, 3号機のペダスタル床下である。
- 現時点の環境条件は、いずれもN₂脱気水中である。



◆ 微粒子発生量の推定

- 水中でのFeO+(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの場合、Uを多く含む微粒子の発生量R(x,y,z)は、前述の(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの式を用いて評価すると、p79の約20mg/cm²の推定結果と同等である。
- 燃料デブリ取り出し後の乾燥処理により気中保管されると、気中環境での微粒子化が生じる。その発生量は、p48に示すように0.01mg/cm²のオーダーと推定され、水中での微粒子発生量に比較して、小さい値と推定される。

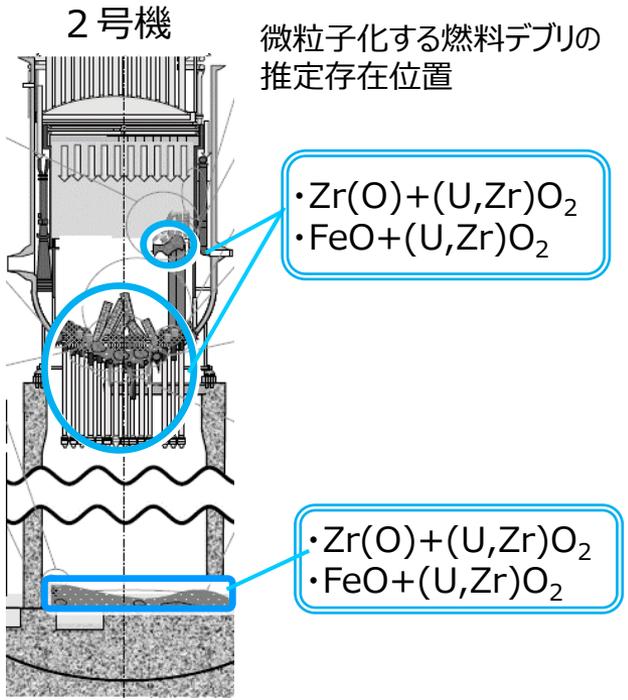
5. 実施内容

(2) 1F燃料デブリにおける経年変化の推定

▶ 2号機 ; $Zr(O)+(U,Zr)O_2$ 及び $FeO+(U,Zr)O_2$, 微粒子発生量の推定

◆ 推定存在位置と現時点の環境条件

- 2号機の $Zr(O)+(U,Zr)O_2$ 、 $FeO+(U,Zr)O_2$ の存在位置は、RPV内部、RPV下部、及び、ペDESTAL床上である。現時点の環境条件は、いずれも N_2 脱気水の湿潤環境である。
- 次頁の評価では、取り出し・乾燥処理され、気中環境に移行する環境変化2ケースを代表例として設定し、微粒子発生量を推定した。



◆ 予測式の設定

• $Zr(O)+(U,Zr)O_2$ の場合*

$$R(x, y, z) = 19.4 \cdot (0.0076x - 0.0007) \cdot (1 - \exp(-0.56yz)) \dots (1)$$

x : $Zr(O)/(Zr(O)+(U,Zr)O_2)$ の比、 y : 気中酸素分圧、 z : 年数

* 確認範囲 $0 \leq z \leq 34$ 年の予測式のため、34年以上は外挿評価

• $FeO+(U,Zr)O_2$ の場合**

$$R(x, y, z) = 2.6 \cdot (0.015x - 0.0027) \cdot (1 - \exp(-50yz)) \dots (2)$$

x : $FeO/(FeO+(U,Zr)O_2)$ の比、 y : 気中酸素分圧、 z : 年数

**確認範囲 $0 \leq z \leq 0.091$ 年の予測式のため、0.091年以上は外挿評価

◆ 微粒子発生量の計算条件

- 微粒子化は水中で発生せず、気中において発生すると設定。よって取り出し・乾燥処理後からの経過年数と酸素分圧を変数として評価した。
- 材料組成比については、 $Zr(O)+(U,Zr)O_2$ の場合、U含有粒子の発生量が最も大きい $x = 0.55$ で評価。
 $FeO+(U,Zr)O_2$ の場合、U含有粒子の発生量が最も大きい $x = 0.6$ で評価。

予測式による微粒子発生量の計算方法 (ガイド)

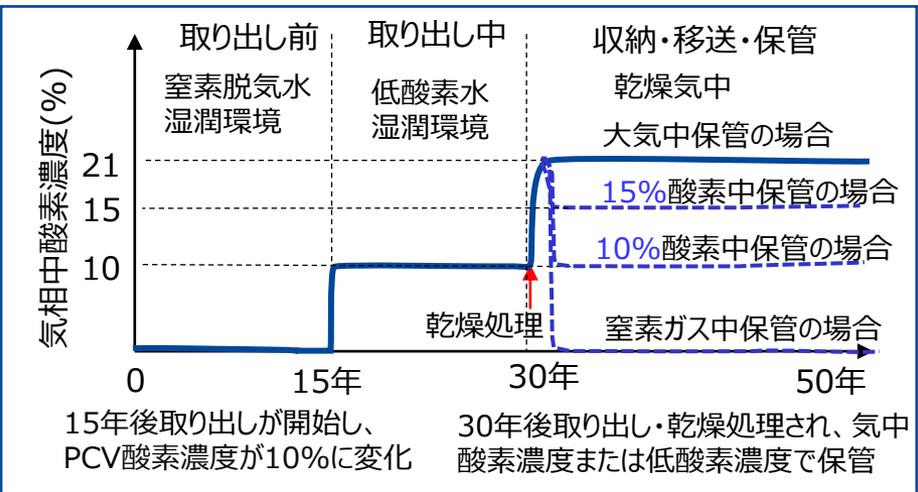
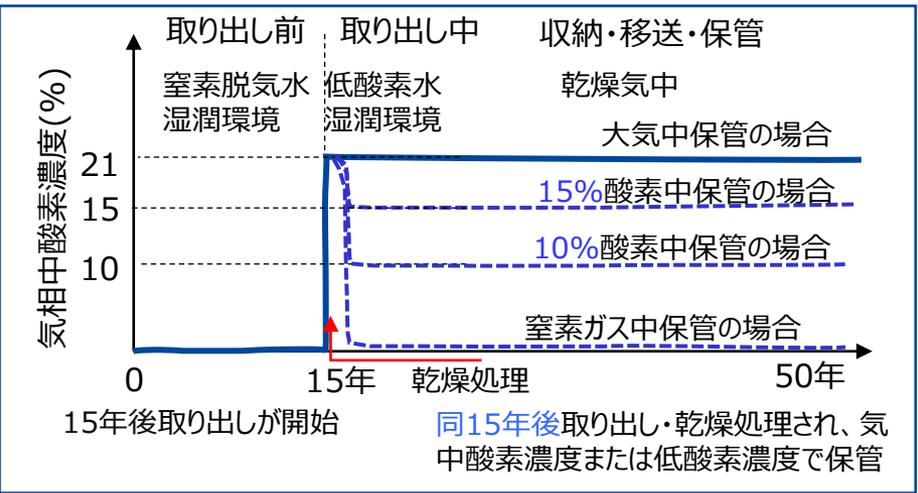
- 乾燥処理後、気中保管される時点から、(1)(2)式を用いて計算する。
- 材料組成比 ($0 < x < 1$) を x に代入する。 x が未知の時、発生量最大となる $x = 0.55$ ($Zr(O)+(U,Zr)O_2$)、または $x = 0.6$ ($FeO+(U,Zr)O_2$)で評価してもよい。
- 気中酸素分圧 ($0 < y \leq 0.21$) を y に代入する。(大気中は $y = 0.21$)
- 気中保管される経過年数を z に代入する。

5. 実施内容

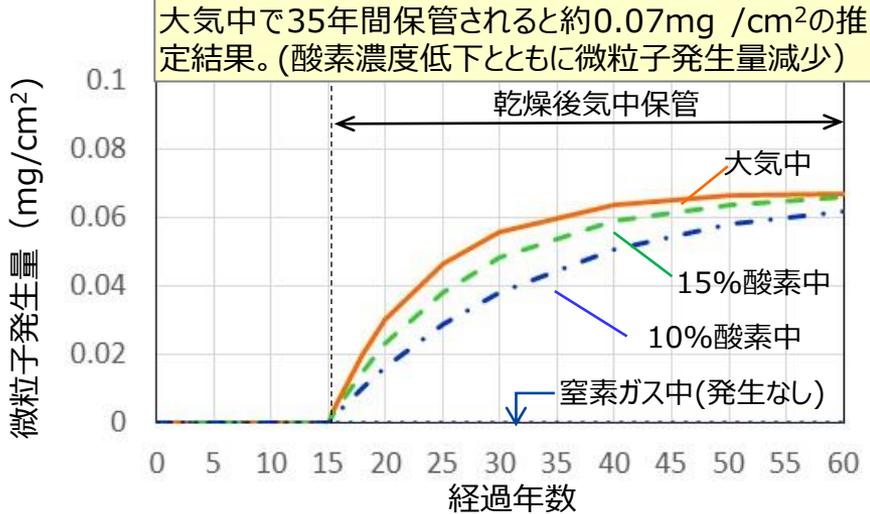
(2) 1F燃料デブリにおける経年変化の推定

▶ 2号機 ; $Zr(O) + (U,Zr)O_2$, 微粒子発生量の推定

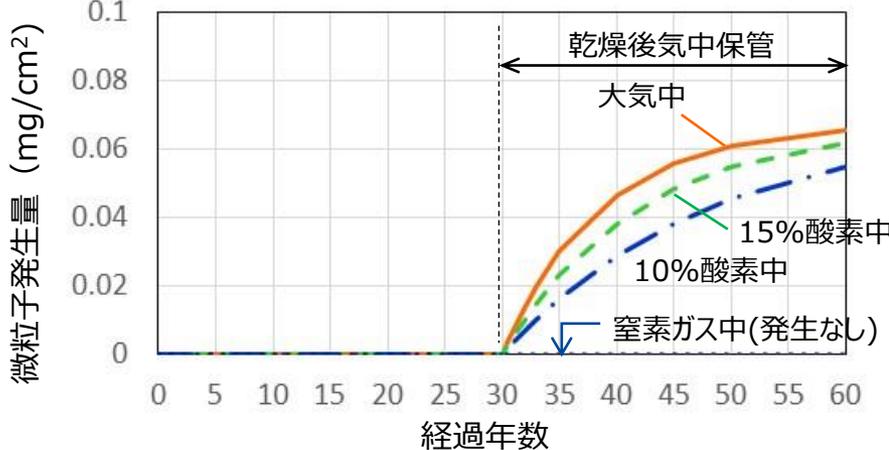
◆ 経過年数と環境条件の設定



◆ 微粒子発生量の計算結果*



※0.07mg/cm²は、燃料デブリ密度 $\rho=10g/cm^3$ のとき、表面0.07 μm が微粒子化する量に相当。



(注) 酸素濃度 (%) = 酸素分圧 (atm) × 100

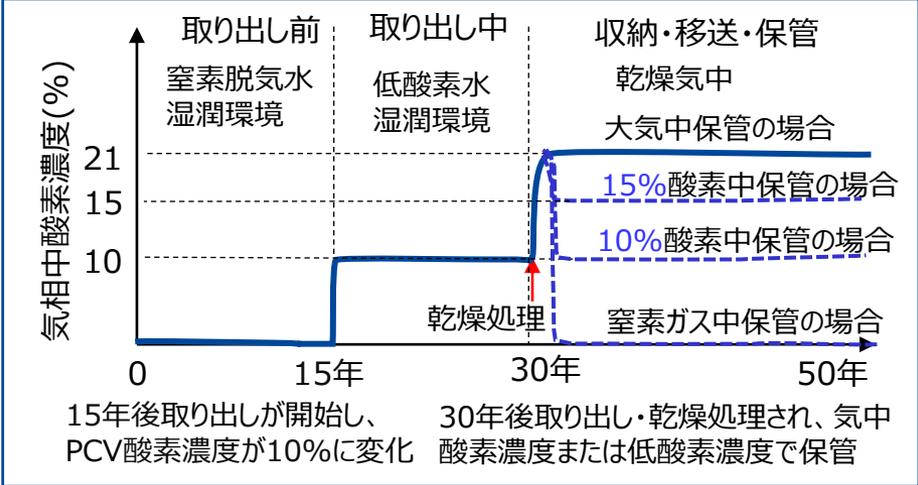
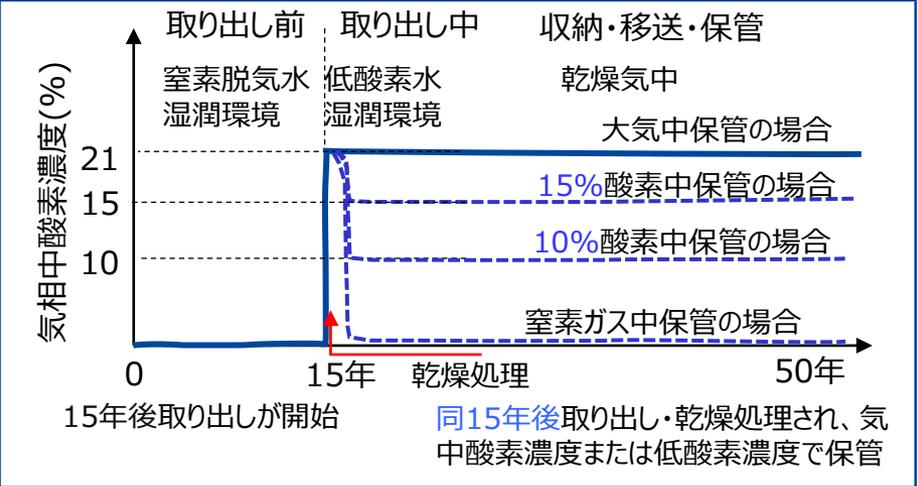
* 確認範囲 0 ≤ z ≤ 34年の予測式のため、微粒子化開始後34年以降は外挿評価

5. 実施内容

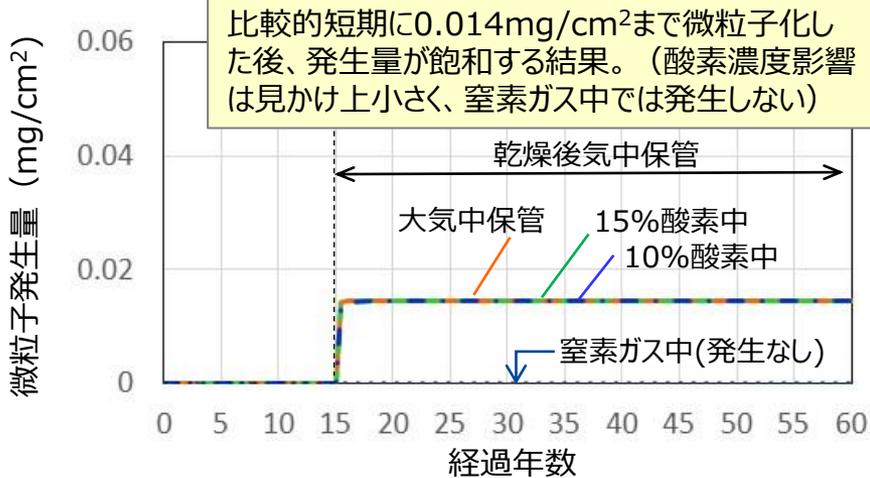
(2) 1F燃料デブリにおける経年変化の推定

▶ 2号機 ; FeO+(U,Zr)O₂, 微粒子発生量の推定

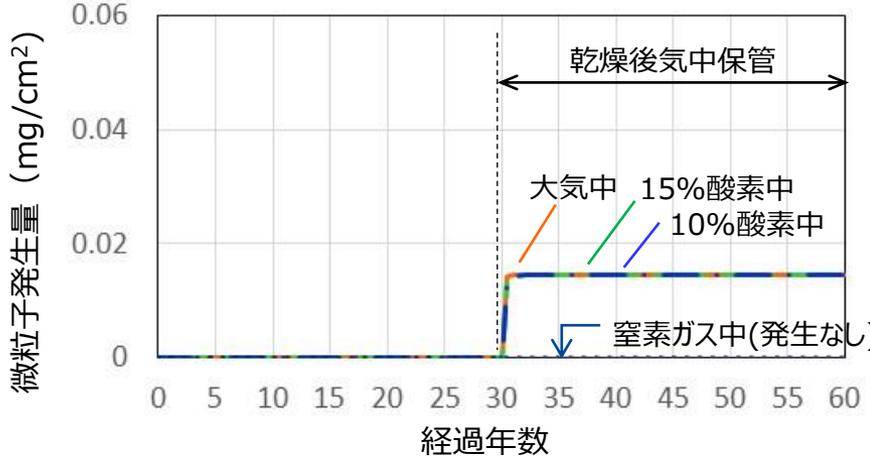
◆ 経過年数と環境条件の設定



◆ 微粒子発生量の計算結果*



※0.06mg/cm²は、燃料デブリ密度ρ=10g/cm³のとき、表面0.06μmが微粒子化する量に相当。



(注) 酸素濃度 (%) = 酸素分圧 (atm) × 100

* 確認範囲 0 ≤ z ≤ 0.091年の予測式のため、微粒子化開始後0.091年以降は外挿評価

5. 実施内容

(2) 1F燃料デブリにおける経年変化の推定

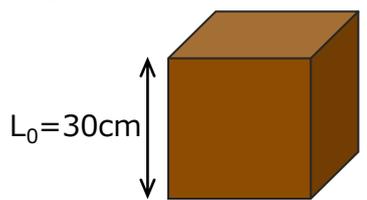
▶ 微粒子発生量の推定結果に関する考察

◆ 取り出し時の加工による表面積増加の影響度、及び、加工により生じる切削粉量の検討

燃料デブリの微粒子発生量は、体積と表面積の比（比表面積）に依存する。そこで、燃料デブリが取り出し時の加工により分割されて比表面積が増加する場合、粒子発生量への影響度を検討した。併せて、加工により生じる粉量について、加工切削代の体積を設定して検討した。

設定条件

①燃料デブリの外形



燃料デブリは様々な形状を有しており、例として30cm角の立方体と仮定。

②表面凹凸の効果

凹凸により表面積は増加するため、表面全体を多数の半球の凹みが覆うと仮定し、凹凸の効果 $\text{Factor}=2$ と設定。（末尾の補足説明資料を参照方）

③加工による燃料デブリの分割と切削代

30cmの燃料デブリが切削により8分割され、その切り代を幅2mmと設定。



検討結果

加工前後の燃料デブリの表面積は次のとおり。

$$\text{加工前} : S_0 = L_0^2 \times 6 \times 2 = 10.8 \times 10^3 \text{ cm}^2$$

$$\text{加工後} : S_1 = L_1^2 \times 6 \times 8 \times 2 = 21.3 \times 10^3 \text{ cm}^2$$

p79に示す(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリの微粒子発生量の推定値R=20mg/cm²を上記の表面積に当てはめると、加工前後の発生微粒子の重量W₀、W₁はそれぞれ以下のとおり。
1/2サイズに8分割すると、発生微粒子は約2倍増加する。

$$\text{加工前} : W_0 = S_0 \times R = 216 \text{ g}$$

$$\text{加工後} : W_1 = S_1 \times R = 426 \text{ g}$$

一方、切削時の切り代の体積V_cと重量W_cは以下のとおり。

$$V_c = (L_0^2 + L_0 \times L_1 \times 2 + L_1^2 \times 4) \times 0.2 = 536.4 \text{ cm}^3$$

$$\text{燃料デブリ密度を} 10\text{g/cm}^3 \text{ とすると、} W_c = 5,364 \text{ g}$$

経年変化による発生微粒子は、切り代量に比べ、約1桁小さい。

取り出し加工時に燃料デブリが分割されると比表面積の増加により、発生微粒子も増加する。一方、切削時の切り代2mmの量と比べると、約一桁小さいと評価される。

まとめ (1)

本事業では、今後1F燃料デブリが保持されると想定される低酸素分圧気中環境及び水中環境での化学的経年変化による微粒子化に着目し、発生条件範囲と時間依存性を、模擬燃料デブリによる気中試験、水中試験により評価した。そして長期にわたる微粒子発生量を予測するための定量式を設定した。その式を用い、各号機の今後の廃炉作業の環境変化を設定し、経年変化による長期微粒子発生量を推定した。得られた主要な知見は、以下の通りである。

- 酸素を含む気中試験において、 $Zr(O)+(U,Zr)O_2$ 、及び、 $FeO+(U,Zr)O_2$ 、 $FeO+(U,Zr)O_2$ 介在ガラス状燃料デブリが微粒子化を生じた。また、酸素分圧水中において、 $(U,Zr)O_2$ 介在ガラス状燃料デブリ、及び、 $FeO+(U,Zr)O_2$ 介在ガラス状燃料デブリが微粒子化を生じた。
- $Zr(O)+(U,Zr)O_2$ について、 $Zr(O)$ 比率の影響や酸素分圧の影響を把握し、微粒子化する条件範囲を明らかにした。また加熱による加速で実温度(50℃)換算で最大35年となる加速試験を行った。そして、微粒子発生量の程度を $Zr(O)/(U,Zr)O_2$ 比や酸素分圧、経過時間の関数で表す定量式を示した。
- $FeO+(U,Zr)O_2$ について、 $FeO/(U,Zr)O_2$ 比や酸素分圧の影響を把握するとともに、微粒子発生量の程度を経過時間の関数で表す定量式を示した。
- $(U,Zr)O_2$ 介在ガラス状燃料デブリについて、介在物比率や酸素分圧の影響を把握し、微粒子化する条件範囲を明らかにした。また加熱による加速で実温度(30℃)換算で最大10年となる加速試験を行った。そして、微粒子発生量の程度を介在物比率や酸素分圧、経過時間の関数で表す定量式を示した。
- $FeO+(U,Zr)O_2$ 介在ガラス状燃料デブリについては、 FeO 介在の影響や酸素分圧の影響を把握するとともに、 U を含む微粒子発生量を、 $(U,Zr)O_2$ 介在ガラス状燃料デブリとの共通性の観点から検討するとともに、微粒子発生量の程度を表す定量式を示した。

$Zr(O)+(U,Zr)O_2$: $(U,Zr)O_2$ 相の中に金属 Zr のマイクロ相を有する燃料デブリ

$FeO+(U,Zr)O_2$: $(U,Zr)O_2$ 相の中に FeO のマイクロ相を有する燃料デブリ

$(U,Zr)O_2$ 介在ガラス状燃料デブリ : ガラス質とともに $(U,Zr)O_2$ をマイクロ介在物として含む燃料デブリ

$FeO+(U,Zr)O_2$ 介在ガラス状燃料デブリ : ガラス質とともに FeO と $(U,Zr)O_2$ をマイクロ介在物として含む燃料デブリ

まとめ (2)

- 今後の廃炉作業により燃料デブリが置かれる環境条件を、取り出しから収納・移送・保管に至るハンドリングフロー案を踏まえて設定した。これらの設定については今後の廃炉作業の方法及び進捗に応じて変更される可能性がある。また、評価すべき燃料デブリの存在位置を号機毎に設定した。今後燃料デブリのサンプル分析を通じて、以下の4種のマイクロ組成を持つ燃料デブリの存在割合を確認することが重要と考えられる。

Zr(O)₂+(U,Zr)O₂ : (U,Zr)O₂相の中に金属Zrのマイクロ相を有する燃料デブリ

FeO+(U,Zr)O₂ : (U,Zr)O₂相の中にFeOのマイクロ相を有する燃料デブリ

(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリ : ガラス質とともに(U,Zr)O₂をマイクロ介在物として含む燃料デブリ

FeO+(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリ : ガラス質とともにFeOと(U,Zr)O₂をマイクロ介在物として含む燃料デブリ

- 1,2,3号機に存在すると推定される非ガラス質の燃料デブリ、Zr(O)₂+(U,Zr)O₂及びFeO+(U,Zr)O₂においては、取り出し開始前(窒素脱気水環境)、及び取り出し中(低水中平衡酸素の水中及び高濃度水蒸気環境)には微粒子は発生しないと推定される。取り出し後、乾燥処理により気中保管される場合、窒素雰囲気での保管であれば微粒子は発生しないが、酸素を含む気中保管の場合には、酸素分圧に依存して微粒子が発生すると推定される。
- 1,3号機に存在すると推定されるガラス状燃料デブリについては、取り出し開始前(窒素環境)には微粒子は発生しないが、取り出し中(低水中平衡酸素水中)には、(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリ及びFeO+(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリから水中平衡酸素分圧に依存して微粒子が発生すると推定される。
さらに、取り出し後、乾燥処理により気中保管される場合、(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリは微粒子が発生しないと推定される。一方、FeO+(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリは、酸素を含む気中で保管の場合に、微粒子が発生すると推定される。

(添付) 補足説明資料

(添付) 補足説明資料

微粒子化の試算方法の検討

- ◆ 燃料デブリの微粒子発生量の推定結果を、取り出し工程や移送、保管工程の開発に資するため、評価指標として微粒子化する深さ、及び、燃料デブリ 1 個当たりの微粒子発生割合（比率）を試算する方法を検討した。

微粒子発生量から微粒子化する深さを試算する方法

微粒子発生量 R (mg/cm^2) は表面積当たりの重量を示す。したがって燃料デブリの表面が微粒子化する深さ d は下式で表される。

$$d \text{ (mm)} = \{ R \text{ (mg/cm}^2) / \rho \text{ (g/cm}^3) \} \times 10^{-2} \quad \rho : \text{燃料デブリの密度}$$

この式から、燃料デブリが微粒子化する物量感を、微粒子化する深さ d で推定することが可能である。

本研究では、微粒子化する深さ d を指標に用いて燃料デブリの経年化を評価した。

微粒子発生量から経年変化の割合を試算する方法

燃料デブリ 1 個あたりの微粒子発生割合（比率）は、体積と表面積の関係に依存するため、実際の燃料デブリの形態が不確定の場合、幾何学的な仮定を行う必要がある。

① 燃料デブリの外形

物体表面積は球のとき最小であるが、燃料デブリは様々な形状を有しており、例として立方体で仮定。



チョルノービリFCM外観例 [1]

② 燃料デブリ寸法の効果

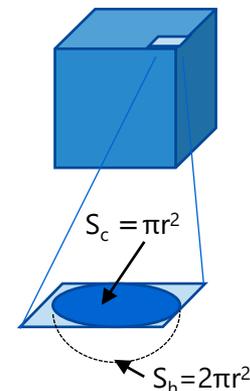
燃料デブリ寸法が小さいほど、体積当たりの表面積は増加する。そこで評価対象に応じて燃料デブリ（例：30cm大等）を設定。

③ 表面凹凸の効果（開口欠陥も含む）

表面凹凸により、表面積は増加する。物体表面に半球の凹みを仮定したとき凹みの表面積 S_h は、 $S_h = 4\pi r^2 / 2 = 2\pi r^2$ 表面が平滑の場合は $S_c = \pi r^2$ 両者の比を取ると下式の通り 2 となり

$$S_h / S_c = 2\pi r^2 / \pi r^2 = 2$$

表面凹凸の効果をFactor=2と仮定。



①から③に仮定が含まれるため、今後燃料デブリがサンプリングされ、形態が明確になった時点から設定評価すると有効である。

[1] B. Burakov, Actinide behavior during severe nuclear accident, study of Chernobyl "lava", corium and hot particles : experience of V.G.Khlopin Radium Institute(KRI), <http://indico.ictp.it/event/8333/session/3/contribution/32/material/slides/0.pdf>

(添付) 補足説明資料

試験データ集：微粒子発生量の計測結果（1）

◆ Zr(O)+(U,Zr)O₂

試験種類	試験No.	試料	試験温度	試験時間	試験雰囲気	微粒子発生量 (mg/cm ²)	備考
気中試験	O-21	種類23	110℃	100h	湿潤空気	3.52E-03	
	O-22	種類24	110℃	100h	湿潤空気	4.24E-04	
	O-27	種類2	110℃	100h	乾燥空気	1.50E-03	
	O-29		110℃	100h	100%O ₂	2.12E-03	
	O-30		50℃	500h	乾燥空気	4.77E-04	
	O-31		130℃	1200h	湿潤空気	2.95E-02	1200h時点のデータ
	O-31		130℃	2500h	湿潤空気	4.17E-02	2500h時点のデータ
	O-38		110℃	100h	湿潤N ₂	0	

◆ Fe(O)+(U,Zr)O₂

試験種類	試験No.	試料	試験温度	試験時間	試験雰囲気	微粒子発生量 (mg/cm ²)	備考
気中試験	O-23	種類10	110℃	100h	湿潤空気	3.64E-03	
	O-24		110℃	100h	N ₂	0	
	O-32	種類101	110℃	100h	湿潤空気	1.59E-04	
	O-33	種類10	110℃	100h	湿潤N ₂ +10%O ₂	2.77E-03	
	O-34		50℃	500h	湿潤空気	3.09E-04	
	O-35		120℃	100h	湿潤空気	4.24E-03	
	O-36		130℃	100h	湿潤空気	5.69E-03	

(添付) 補足説明資料

試験データ集：微粒子発生量の計測結果（2）

◆(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリ

試験種類	試験No.	試料	試験温度	試験時間	試験雰囲気	微粒子発生量 (mg/cm ²)	備考
水中試験	L-21	種類911	90℃	100h	空気平衡水	1.20E-01	
	L-22	種類912	90℃	100h	空気平衡水	1.28E-01	
	L-30	種類913	90℃	100h	空気平衡水	2.14E-01	
	L-23	種類91	90℃	100h	N ₂ +10%O ₂ 平衡水	3.41E-01	
	L-26		90℃	100h	空気平衡ホウ酸水	1.56E-01	
	L-28		90℃	100h	100%O ₂ 平衡水	3.78E-01	
	L-32		90℃	933h	空気平衡水	1.54E+00	933h時点のデータ
	L-32		90℃	1720h	空気平衡水	2.41E+00	1720h時点のデータ
	L-32		90℃	3000h	空気平衡水	3.40E+00	3000h時点のデータ
	L-33		80℃	100h	空気平衡水、流水	2.58E-01	流速：1mL/s (0.8 cm/s)

(添付) 補足説明資料

試験データ集：微粒子発生量の計測結果（3）

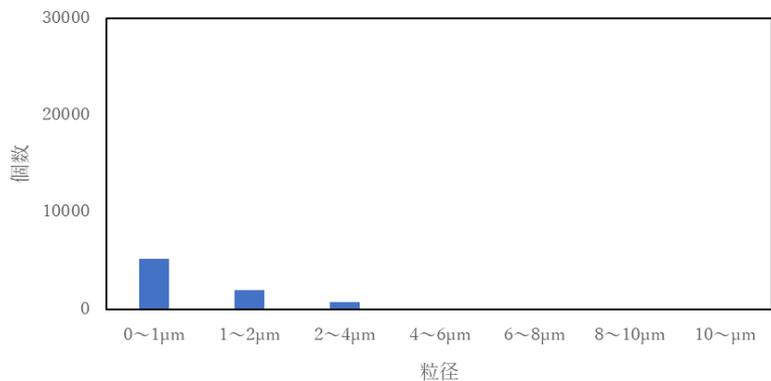
◆Fe(O)+(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリ

試験種類	試験No.	試料	試験温度	試験時間	試験雰囲気	微粒子発生量 (mg/cm ²)	備考
気中試験	O-25	種類93	110℃	100h	湿潤空気	7.48E-03	
	O-26		110℃	100h	N ₂	0	
	O-28		110℃	100h	乾燥空気	1.31E-02	
	O-37		110℃	100h	湿潤N ₂ +10%O ₂	2.47E-03	
水中試験	L-24	種類93	90℃	100h	N ₂ 平衡水	0	
	L-25		90℃	100h	N ₂ +2%O ₂ 平衡水	2.07E-01	
	L-27		90℃	100h	空気平衡水 →気中乾燥	1.20+00 2.48E-03	上段：水中試験後データ 下段：気中乾燥後データ
	L-29		90℃	100h	100%O ₂ 平衡水	3.78E-01	
	L-31		90℃	100h	N ₂ +10%O ₂ 平衡水	1.34E+00	

(添付) 補足説明資料

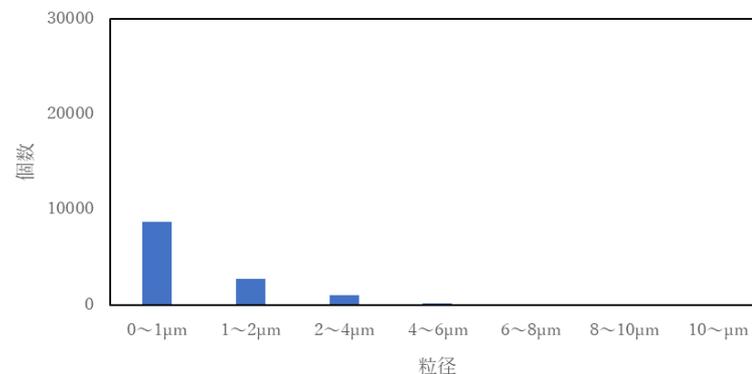
試験データ集：微粒子径の計測結果（1）

◆ Zr(O)+(U,Zr)O₂



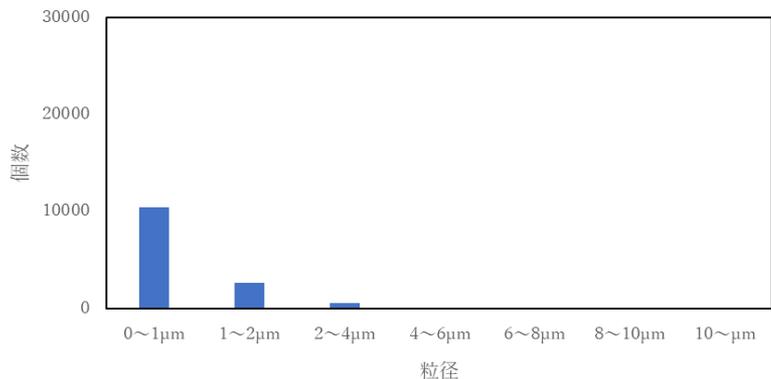
試験No.	試料	温度	時間	雰囲気
O-21	種類23	110℃	100h	湿潤空気

◆ Zr(O)+(U,Zr)O₂



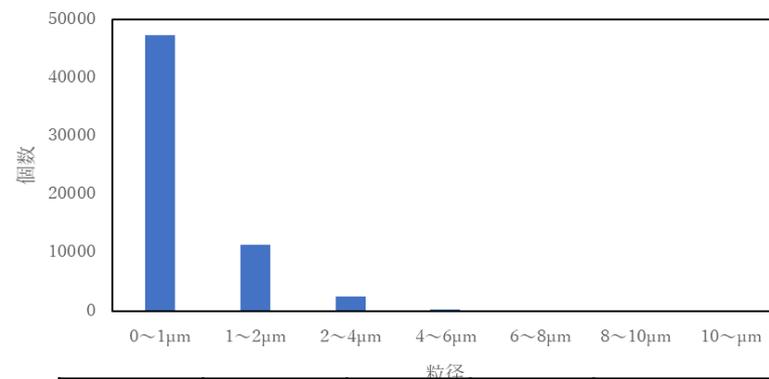
試験No.	試料	温度	時間	雰囲気
O-27	種類2	110℃	100h	乾燥空気

◆ Zr(O)+(U,Zr)O₂



試験No.	試料	温度	時間	雰囲気
O-22	種類24	110℃	100h	湿潤空気

◆ Zr(O)+(U,Zr)O₂

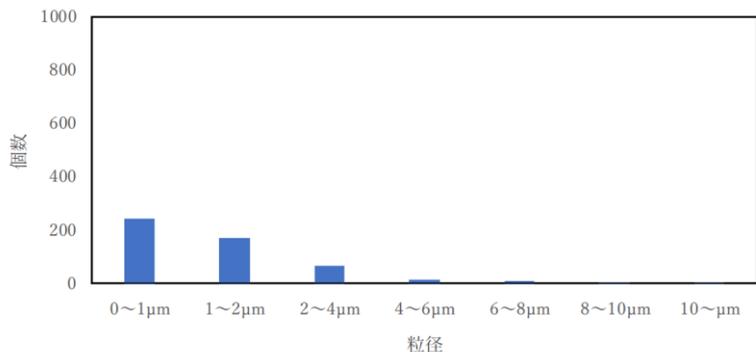


試験No.	試料	温度	時間	雰囲気
O-29	種類2	110℃	100h	100%O ₂

(添付) 補足説明資料

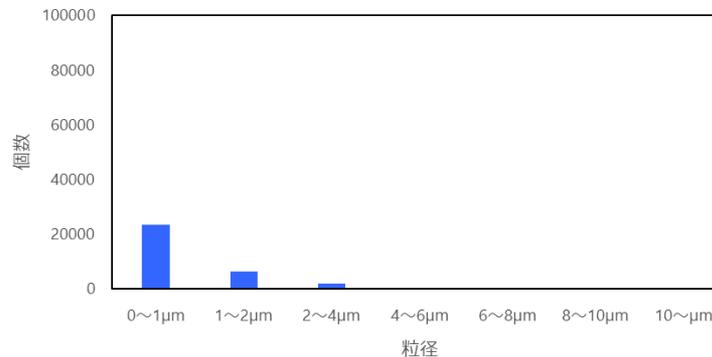
試験データ集：微粒子径の計測結果 (2)

◆ Zr(O)+(U,Zr)O₂



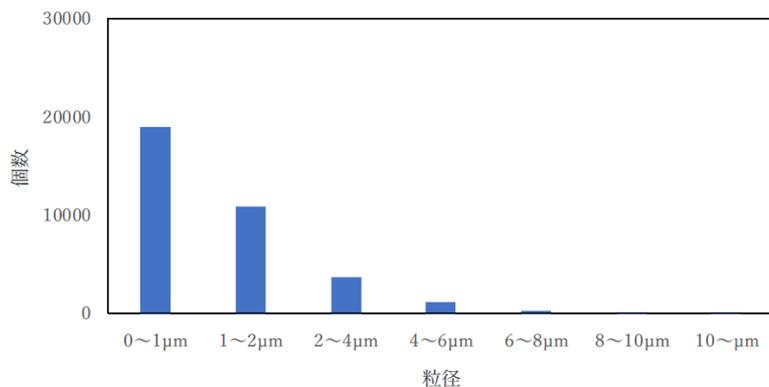
試験No.	試料	温度	時間	雰囲気
O-30	種類2	50°C	500h	乾燥空気

◆ Fe(O)+(U,Zr)O₂



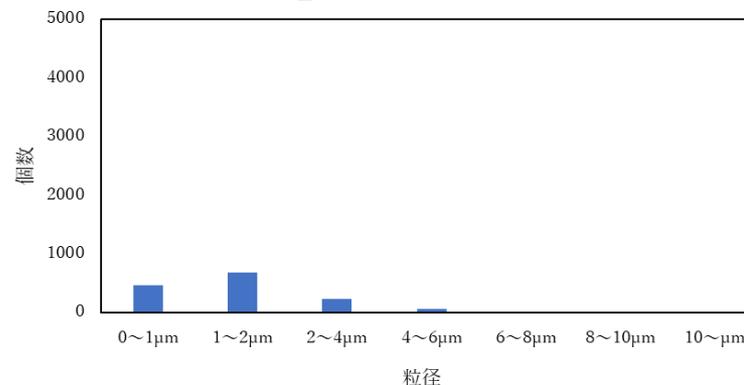
試験No.	試料	温度	時間	雰囲気
O-23	種類10	110°C	100h	湿潤空気

◆ Zr(O)+(U,Zr)O₂



試験No.	試料	温度	時間	雰囲気
O-31	種類2	130°C	2500h	湿潤空気

◆ Fe(O)+(U,Zr)O₂

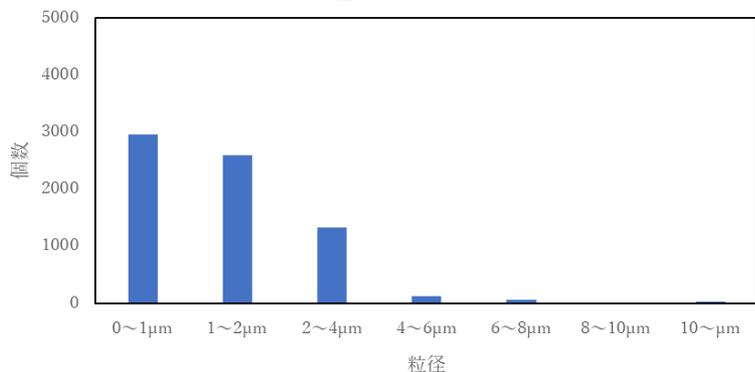


試験No.	試料	温度	時間	雰囲気
O-32	種類101	110°C	100h	湿潤空気

(添付) 補足説明資料

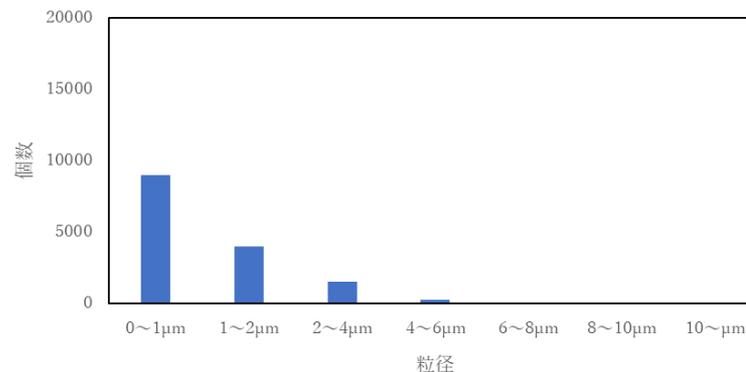
試験データ集：微粒子径の計測結果 (3)

◆ Fe(O)+(U,Zr)O₂



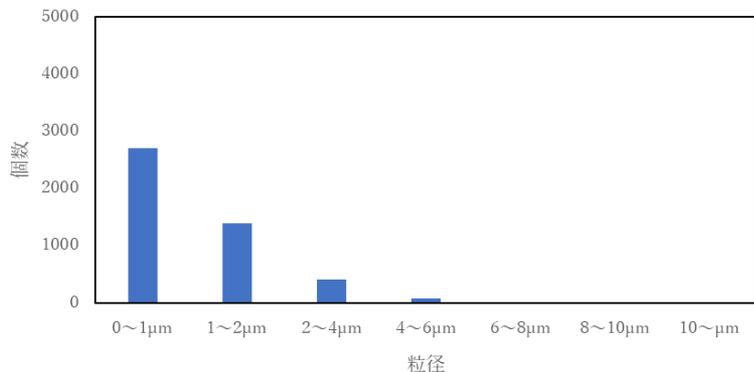
試験No.	試料	温度	時間	雰囲気
O-33	種類10	110°C	100h	湿潤N ₂ +10%O ₂

◆ Fe(O)+(U,Zr)O₂



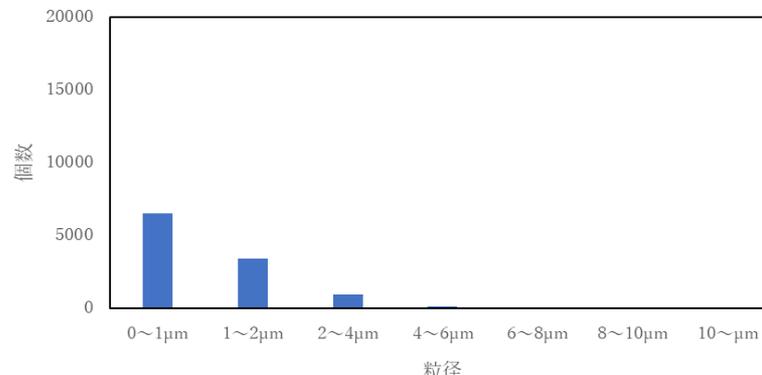
試験No.	試料	温度	時間	雰囲気
O-35	種類10	120°C	100h	湿潤空気

◆ Fe(O)+(U,Zr)O₂



試験No.	試料	温度	時間	雰囲気
O-34	種類10	50°C	500h	湿潤空気

◆ Fe(O)+(U,Zr)O₂

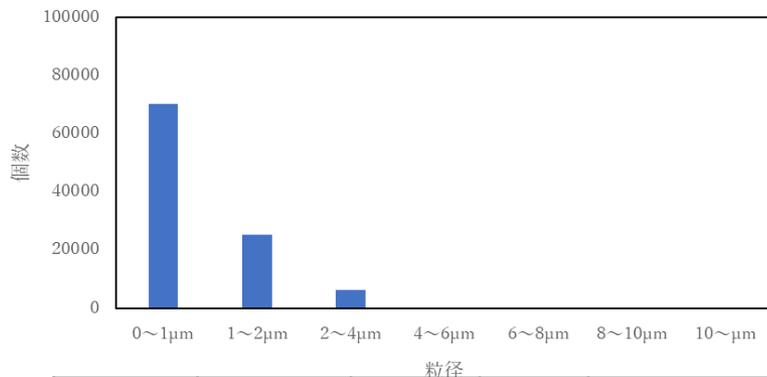


試験No.	試料	温度	時間	雰囲気
O-36	種類10	130°C	100h	湿潤空気

(添付) 補足説明資料

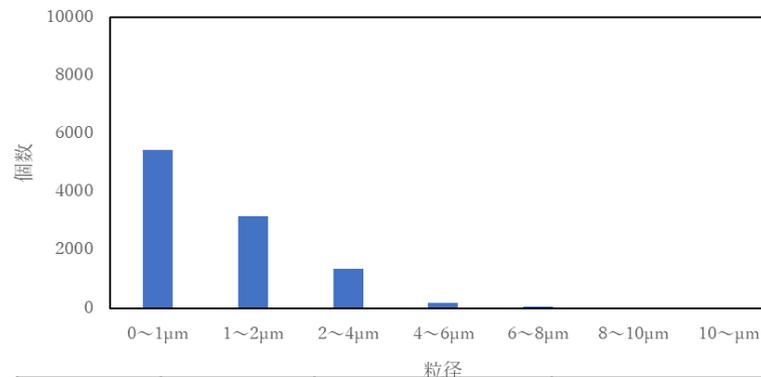
試験データ集：微粒子径の計測結果（4）

◆ Fe(O)+(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリ



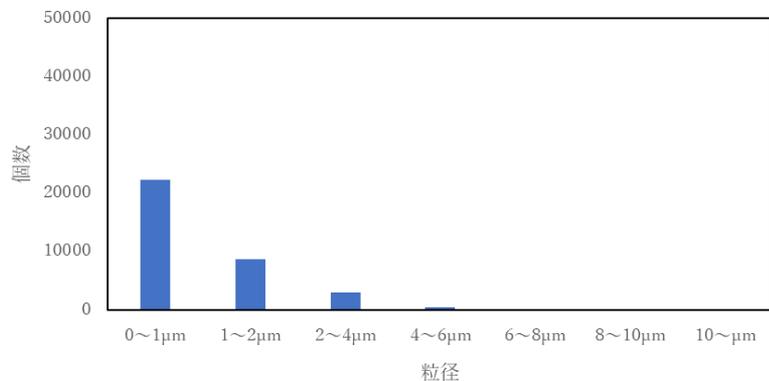
試験No.	試料	温度	時間	雰囲気
O-25	種類93	110°C	100h	湿潤空気

◆ Fe(O)+(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリ



試験No.	試料	温度	時間	雰囲気
O-37	種類93	110°C	100h	湿潤N ₂ +10%O ₂

◆ Fe(O)+(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリ

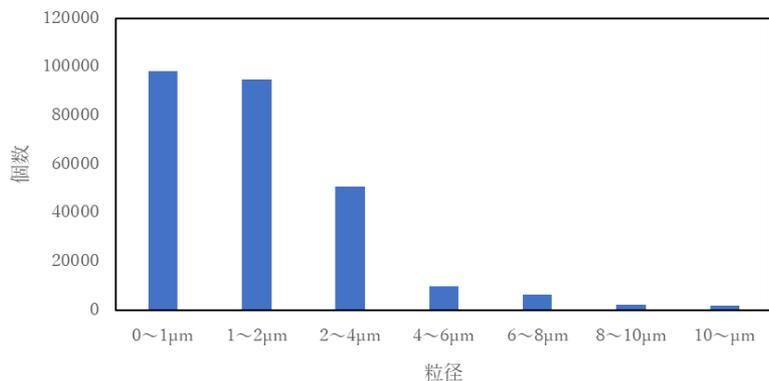


試験No.	試料	温度	時間	雰囲気
O-28	種類93	110°C	100h	乾燥空気

(添付) 補足説明資料

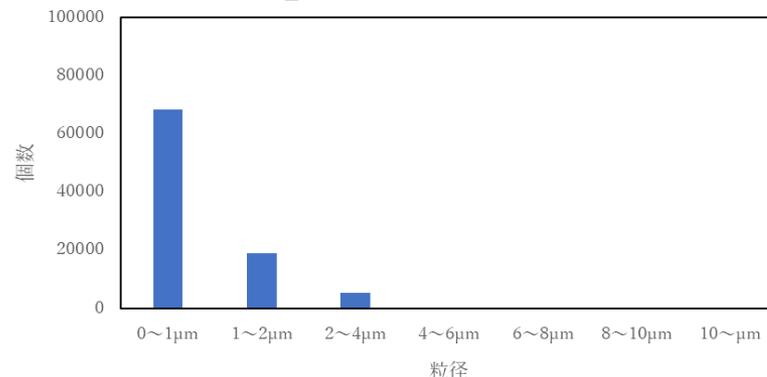
試験データ集：微粒子径の計測結果 (5)

◆(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリ



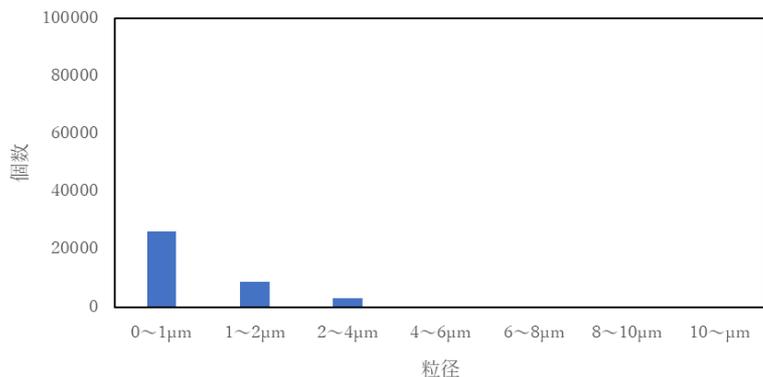
試験No.	試料	温度	時間	雰囲気
L-32	種類91	90℃	3000h	空気平衡水中

◆Fe(O)+(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリ



試験No.	試料	温度	時間	雰囲気
L-25	種類93	90℃	100h	N ₂ +2%O ₂ 平衡水中

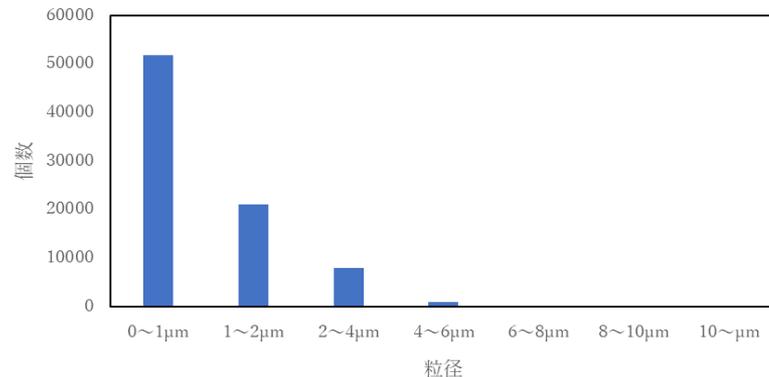
◆Fe(O)+(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリ



試験No.	試料	温度	時間	雰囲気
L-27	種類93	90℃	100h	空気平衡水中試験後、空气中で110℃×24h乾燥

※乾燥処理により発生した微粒子の粒径計測結果

◆Fe(O)+(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリ



試験No.	試料	温度	時間	雰囲気
L-29	種類93	90℃	100h	100%O ₂ 平衡水中

TOSHIBA